

PCT

世界知的所有権機関  
国際事務局

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

<b>(51) 国際特許分類6</b> <b>C08L 95/00, C08K 5/13, 5/09, 5/053 //</b> <b>(C08L 95/00, 97:00)</b>	<b>A1</b>	<b>(11) 国際公開番号</b> <b>WO97/20891</b>  <b>(43) 国際公開日</b> 1997年6月12日(12.06.97)
<b>(21) 国際出願番号</b> PCT/JP96/03256  <b>(22) 国際出願日</b> 1996年11月7日(07.11.96)  <b>(30) 優先権データ</b> 特願平7/315497      1995年12月4日(04.12.95)      JP 特願平8/117425      1996年5月13日(13.05.96)      JP  <b>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について)</b> 花王株式会社(KAO CORPORATION)[JP/JP] 〒103 東京都中央区日本橋茅場町一丁目14番10号 Tokyo, (JP) <b>(72) 発明者: および</b> <b>(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ)</b> 玉置良市(TAMAKI, Ryoichi)[JP/JP] 朝守勝彦(ASAMORI, Katsuhiko)[JP/JP] 佐々木博隆(SASAKI, Hirotaka)[JP/JP] 船田 等(FUNADA, Hitoshi)[JP/JP] 谷口高雄(TANIGUCHI, Takao)[JP/JP] 〒640 和歌山県和歌山市湊1334 花王株式会社 研究所内 Wakayama, (JP)		<b>(74) 代理人</b> 弁理士 古谷 馨, 外(FURUYA, Kaoru et al.) 〒103 東京都中央区日本橋堀留町1-8-11 日本橋TMビル Tokyo, (JP)  <b>(81) 指定国</b> CN, ES, JP, MX, US.  添付公開書類 国際調査報告書
<b>(54) Title: ASPHALT EMULSION</b>  <b>(54) 発明の名称</b> アスファルト乳剤  <b>(57) Abstract</b> An asphalt emulsion comprising water, asphalt, an emulsifying agent (A), a polyphenolic compound (B) and at least one member (C) selected from the group consisting of anionic polymeric dispersants, hydroxy carboxylic acids and water-soluble salts of hydroxy carboxylic acids and/or at least one member (D) selected from the group consisting of saccharides, sugar alcohols and polyhydric alcohols, which is excellent in storage stability, miscibility with aggregates and antifoaming properties as an emulsion in itself and also in the adherence of the products of breaking of the emulsion to aggregates and the resistance to stripping from the products of working with the use of the emulsion. When at least one member selected from the group consisting of specific aliphatic amines, aminated lignins, imidazolines each bearing a hydrocarbon group having at least 7 carbon atoms, betaines each bearing a hydrocarbon group having at least 7 carbon atoms, and amidobetaines each bearing a hydrocarbon group having at least 7 carbon atoms is used as the emulsifying agent (A), the resulting asphalt emulsion is excellent also in the miscibility of the emulsion itself with cement, the easiness of controlling the decomposition time thereof and the adherence of the products of breaking thereof to crushed stone and the products of working with the use of the asphalt emulsion (such as pavement) are excellent in strength and endurance.		

(57) 要約

乳剤自体の、貯蔵安定性、骨材との混合性、低発泡性、その破壊物の骨材への付着性、その乳剤を用いて施工された施工物における剥離抵抗性に優れる、水、アスファルト、(A) 乳化剤、(B) ポリフェノール性化合物、及び(C) アニオン性高分子分散剤、ヒドロキシカルボン酸及びヒドロキシカルボン酸の水溶性塩からなる群から選ばれた少なくとも一種、及び/又は、(D) 糖類、糖アルコール類及び多価アルコール類からなる群から選ばれた少なくとも一種からなるアスファルト乳剤。

(A) 乳化剤として、特定の脂肪族アミン、アミノ化リグニン、炭素数7以上の炭化水素基を有するイミダゾリン、炭素数7以上の炭化水素基を有するベタイン及び炭素数7以上の炭化水素基を有するアミドベタインからなる群から選ばれた少なくとも一種が用いられた場合には、更に、乳剤自体の、セメントとの混合性及び分解時間のコントロールの容易性、その破壊物の碎石への付着性、及びその乳剤を用いて施工された施工物（道路舗装等）における強度及び耐久性にも優れる。

情報としての用途のみ

PCTに基づいて公開される国際出願をパンフレット第一頁にPCT加盟国を同定するために使用されるコード

AL	アルバニア	EE	エストニア	LR	リベリア	RU	ロシア連邦
AM	アルメニア	EF	スペイン	LS	レソト	SE	スウェーデン
AT	オーストリア	FR	フランス	LT	リトアニア	SG	シンガポール
AU	オーストラリア	GB	イギリス	LU	ルクセンブルグ	SI	スロベニア
AZ	アゼルバイジャン	GE	グルジア	LV	ラトヴィア	SK	スロバキア
BB	バルバドス	GR	ギリシャ	MC	モナコ	SN	セネガル
BE	ベルギー	GN	ギニア	MD	モルドバ	SZ	スワジランド
BF	ブルキナ・ファソ	GU	グアム	MG	マダガスカル	TD	チャド
BG	ブルガリア	HR	クロアチア	MK	マケドニア	TG	トーゴ
BJ	ベナン	IE	アイルランド	UA	ウクライナ	TM	トルクメニスタン
BR	ブラジル	IS	アイスランド	ML	マリ	TR	トルコ
BY	ベラルーシ	IT	イタリア	MN	モンゴル	TT	トリニダード・トバゴ
CA	カナダ	JP	日本	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
CC	中央アフリカ共和国	KE	ケニア	MW	マラウイ	US	米国
CF	コンゴ	KG	キルギスタン	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CH	スイス	KP	朝鮮民主主義人民共和国	NE	ニジェール	VN	ベトナム
CI	コート・ジボアール	KZ	カザフスタン	NL	オランダ	YU	ユーゴスラビア
CM	カメルーン	LA	ラオス	NO	ノルウェー		
CN	中国	LI	リベリア	NZ	ニュージーランド		
CZ	チェコ共和国	LT	リトアニア	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	LU	ルクセンブルグ	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	LV	ラトヴィア	RO	ルーマニア		

## 明細書

## アスファルト乳剤

## 背景技術

## 技術分野：

本発明は、アスファルト乳剤の調製に使用される、アスファルト乳剤用添加剤組成物、アスファルト乳剤用組成物及び乳化用組成物、水中油滴型アスファルト乳剤、骨材と水中油滴型アスファルト乳剤からなる舗装用組成物、及び前記乳化用組成物の調製方法に関する。本発明に係るアスファルト乳剤は、乳剤としての安定性及び骨材との混合性に優れ、その分解時間のコントロールが容易であり、かつ、その乳剤の破壊物（主にアスファルト）は、骨材に対する付着性に優れる。また、その乳剤を用いて施工された施工物は、剥離抵抗性に優れる。本発明に係る他のアスファルト乳剤は、開粒度混合、密粒度混合、スラリーシール、サンド混合、再生混合等の用途において、プラント又は路上で骨材と混合して使用され、乳剤としての安定性、骨材との混合性及びセメントとの混合性に優れ、その分解時間のコントロールが容易であり、かつ、その乳剤の破壊物（主にアスファルト）は、碎石への付着性に優れる。また、その乳剤を用いて施工された舗装道路等の施工物は、強度、耐久性及び剥離抵抗性に優れる。

## 関連技術の記述：

石油から得られるアスファルト、タール、ピッチ等の瀝青質は、古くから、舗装材料や防水・接着材料として、及び鉄道軌道の敷設において、広く使用されている。しかしながら、瀝青質は非常に粘着性が高いため、そのまま使用すると作業性が極めて悪い。そこで、所望の作業性を確保するために、瀝青質は、加熱する（即ち、加熱溶融方式）、適当な乳化剤及び水を用いて乳化物の形態とす

る、適当な溶剤に溶解させる等の方法によってその流動性を向上させた後に、使用されている。

瀝青質の乳化物のうち、アスファルトの水性乳化物は、一般に「アスファルト乳剤」と呼ばれている。そのようなアスファルト乳剤は、施工面に直接散布される急分解性乳剤（即ち、散布用乳剤）と、骨材と混合される遅分解性乳剤（即ち、混合用乳剤）とに大別される。アスファルト乳剤の調製において使用される界面活性剤は、アニオン性活性剤、カチオン性活性剤、ノニオン性活性剤及び両性活性剤の中から適宜選択されるが、その種類は、概ね、その施工方法に応じて規定される。

上記アスファルト乳剤のうち、混合用乳剤は、骨材、フィラー、その他の成分と混合される。そのようにして調製されたアスファルト組成物が、道路舗装体の形成に用いられる。アスファルト組成物を用いて道路施工した後、その組成物中の水性成分が蒸発して除去されると、いわゆるエマルジョン破壊が起こる。それにより、アスファルトが硬化し、道路舗装体の形成が完成する。

また、この混合用乳剤と共に使用される骨材の種類により、形成される道路舗装体の種類と、その性質・性能が異なる。例えば、混合用乳剤と開粒度骨材からなるアスファルト組成物（開粒度混合）は、上層・下層路盤の施工に、あるいは表層の排水性舗装の施工に使用される。また、混合用乳剤と密粒度骨材からなるアスファルト組成物（密粒度混合）は、上層路盤や表層の施工に使用される。更に、混合用乳剤を細骨材やフィラーと混合してなる組成物は、劣化舗装表面の修復を目的とするスラリーシーリングに、それを砂と混合してなる組成物（サンド混合）は、簡易表層の形成に使用される。劣化した既設舗装の再利用のために、混合用乳剤を舗装体の破砕物と混合すること（再生混合）も行われている。一方、このようなアスファルト組成物を調製するための混合方法には、プラント混合と路上混合の二種類があり、それは、状況に応じて適宜使い分けられる。

混合用乳剤を用いた道路施工では、アスファルト乳剤が破壊して再生されたアスファルトが骨材に付着し、骨材間でバインダーとして作用し、それによって道路舗装体の強度及び耐久性が発現される。ところで、混合用乳剤には、前記したように、界面活性剤が含まれている。界面活性剤のうち、アニオン性界面活性剤又はノニオン性界面活性剤を含有する乳剤は、骨材との混合性が良いという利点を有するが、乳剤の破壊物、主にアスファルト、の骨材への付着性が悪いという大きな欠点がある。一方、カチオン性界面活性剤は、その電氣的誘引力により、アスファルト粒子の骨材への付着を促進する。しかし、カチオン性界面活性剤を含有するアスファルト乳剤を用いて施工された道路舗装体も、その強度及び耐久性は不十分である。このように、アスファルト乳剤を用いて施工された道路舗装体は、いずれも強度及び耐久性が不足するというのが通説となっている。前記したように、アスファルト乳剤を用いて施工された道路舗装体の強度及び耐久性は、アスファルトの骨材への接着によって発現されるが、現存のアスファルト乳剤を用いた場合に発現される道路舗装体の強度及び耐久性は、不十分であり、より高い強度及び耐久性が実現され得るような改善策が要望されている。

更に、混合用乳剤には、機械的な強制攪拌がなされた際の乳剤の安定性が良いこと、運搬、敷きならし、転圧等の施工中は分離しない（即ち、エマルジョン破壊が起きない）こと、舗設後はある程度速く分離する（即ち、エマルジョンが破壊される）こと、乳剤の破壊物の骨材への付着性が優れていること、並びに、このような諸性質が骨材の種類や施工時の気温等の影響を受けないこと等の性能が要求されている。このような要求を満足するための対策として、大量の乳化剤（界面活性剤）の使用、多種類の乳化剤の使用、保護コロイドとしての水溶性の有機高分子、例えばポリビニルアルコール、ゼラチン、メチルセルロース、ポリアクリルアミド、グアーガム等、の、アスファルト乳剤への添加が提案されている。このような対策を実施することにより、アスファルト乳剤は安定化される。

しかし、この対策の実施によっては、骨材－アスファルト界面の性質を改善し、主にアスファルトからなる乳剤の破壊物の骨材への付着性を本質的に改善するという効果は得られない。

上記したもの以外にも、アスファルト乳剤の諸性質の向上のために、種々の方法が提案されている。

例えば、アスファルト乳剤の骨材との混合性及び乳剤の破壊物の骨材への付着性能の向上のために、アミノ化リグニン、アルキルイミダゾリン系化合物及びノニオン性乳化剤を用いること（米国特許第3, 871, 893号参照）、アルキルイミダゾリン系化合物の脂肪酸塩を用いること（米国特許第3, 979, 323号参照）、及び、特定のノニオン性乳化剤を用いること（特開平7-118538号公報参照）が提案されている。このような技術により、アスファルト乳剤の骨材との混合性は改良される。しかし、このようなアスファルト乳剤を用いた場合でも、水が介入するために、アスファルトの骨材への接着性、及び、施工後の舗装体の剥離抵抗性は不十分である。このように、界面活性剤の選択に係る対策のみでは、舗装体は、十分な強度及び耐久性を示さない。また、特開昭57-42763号公報には飽和脂肪酸の利用が、米国特許第3, 867, 162号にはトール油脂肪酸の利用が、それぞれ開示されている。しかし、このような有機酸を含有するアスファルト乳剤は、塩基性を示す、セメントや鉄鋺滓が用いられる場合には、使用することができない。加えて、道路用アスファルトや骨材の品質低下が懸念される一方、再生材料の利用も普及している現状において、このような有機酸を含有するアスファルト乳剤を用いたのでは、乳剤の骨材との良好な混合性、及び、アスファルト等の乳剤の破壊物中の成分の骨材に対する強固な付着性の発現が期待できない。

特開昭63-17960号公報には、アスファルト乳剤にタンニン酸もしくはタンニン化合物を含有させることにより、乳剤の骨材との混合性、アスファルト

等の骨材に対する付着性及びその乳剤を用いて施工された舗装体の剥離抵抗性が改善され、かつ、乳剤の分解時間が長くなる旨が記載されている。当該公報に記載された、カチオン性界面活性剤である牛脂アルキルプロピレンジアミン、ポリオキシエチレン牛脂アルキルプロピレンジアミン、ステアリルトリメチルアンモニウムクロライドを含むアスファルト乳剤では、確かに、タンニン酸の添加によって分解時間の遅延化は達成される。しかし、その場合であっても、そのアスファルト乳剤を混合用乳剤として使用するには、分解時間が短すぎる。また、ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルのようなノニオン性界面活性剤やオレイン酸ソーダのようなアニオン性界面活性剤を含むアスファルト乳剤に、タンニン酸もしくはタンニン化合物を含有させると、乳剤の骨材との混合性は良くなるが、アスファルト等の乳剤の破壊物中の成分の骨材に対する付着性が著しく悪化し、そのため、十分な舗装体強度及び耐久性は得られない。

このように、道路舗装用の、混合用アスファルト乳剤と骨材からなる組成物（例えば、開粒度混合、密粒度混合、スラリーシール、サンド混合、再生混合）の調製に使用されるアスファルト乳剤であって、乳剤としての安定性、骨材との混合性、分解時間のコントロールの容易性、その破壊物の碎石への付着性、及び、その乳剤を用いて施工された舗装体の剥離抵抗性、強度及び耐久性という性能が、全て満足されたアスファルト乳剤は知られておらず、その開発が強く要望され、かつ、その開発に大きな期待が寄せられている。

#### 発明の開示

##### 発明の概要：

本発明者らは、アスファルト乳剤に係る上記課題を解決すべく、鋭意研究した。その研究の結果、本発明者らは、アスファルトの乳化に用いられる乳化剤水溶液に、アスファルト乳剤中のアスファルト粒子に対して、保護コロイドとして働く

と共に、骨材に対して付着親和性を有するポリフェノール性化合物と、粘土、石粉、セメント等の無機物用の分散剤及び／又は保水性成分を添加すると、それら相互の複合作用が発揮され、アスファルト乳剤の乳剤安定性、骨材との混合性及びセメントとの混合性、アスファルト等の乳剤の破壊物の骨材への付着性、及びその乳剤を用いて施工された舗装体の剥離抵抗性及び強度が、飛躍的に改善されることを見い出した。本発明は、この知見を基に完成された。

即ち本発明第一の態様は、(B) ポリフェノール性化合物と、(C) アニオン性高分子分散剤、ヒドロキシカルボン酸及びヒドロキシカルボン酸の水溶性塩、及び、(D) 糖類、糖アルコール類及び多価アルコール類からなる群から選ばれた少なくとも一種、及び任意に(A) 乳化剤からなるアスファルト乳剤用添加剤組成物に関する。

また、本発明第二の態様は、アスファルト、水、(A) 乳化剤、(B) ポリフェノール性化合物、及び、(C) アニオン性高分子分散剤、ヒドロキシカルボン酸及びヒドロキシカルボン酸の水溶性塩、及び、(D) 糖類、糖アルコール類及び多価アルコール類からなる群から選ばれた少なくとも一種からなるアスファルト乳剤に関する。

本発明第二の態様のアスファルト乳剤は、(A) 乳化剤、(B) ポリフェノール性化合物、及び、(C) アニオン性高分子分散剤またはオキシカルボン酸もしくはその水溶性塩、及び／または(D) 糖類、糖アルコール類及び多価アルコール類の中から選ばれる1種以上の化合物、を必須成分として含有することを特徴とするアスファルト乳剤を包含する。

更に、本発明第三の態様は、骨材と、本発明第二の態様のアスファルト乳剤からなる、道路舗装等に用いられる舗装用組成物に関する。

本発明第四の態様は、アスファルト乳剤の調製という、本発明第一の態様のアスファルト乳剤用添加剤組成物の用途に関する。



本発明第五の態様は、水、(A) 乳化剤、(B) ポリフェノール性化合物、及び、(C) アニオン性高分子分散剤、ヒドロキシカルボン酸及びヒドロキシカルボン酸の水溶性塩、及び、(D) 糖類、糖アルコール類及び多価アルコール類からなる群から選ばれた少なくとも一種からなる乳化用組成物に関する。

本発明第五の態様の乳化用組成物は、更に、一塩基酸を含有していてもよい。

本発明第六の態様は、(B) 成分の水溶液に、(A) 成分と(D) 成分との混合物を添加し、水溶液を調製する工程 1、及び、得られた水溶液に、(C) 成分の水溶液を添加する工程 2 からなる、(C) 及び(D) 成分を含有する本発明第五の態様の乳化用組成物の調製方法に関する。

本発明第七の態様は、(B) 成分の水溶液に、一塩基酸を添加し、酸性水溶液を調製する工程 1、その酸性水溶液に、(A) 成分と(D) 成分との混合物を添加し、水溶液を調製する工程 2、及び、得られた水溶液に、(C) 成分の水溶液を添加する工程 3 からなる、(C) 及び(D) 成分と一塩基酸を含有する本発明第五の態様の乳化用組成物の調製方法に関する。

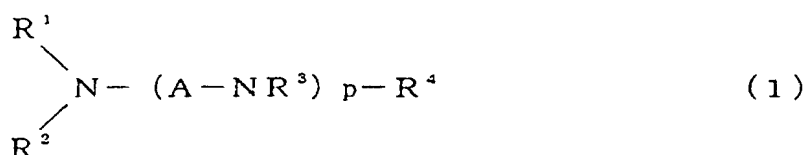
本発明第八の態様は、本発明第五の態様の乳化用組成物に、熔融アスファルトを加え、混合物を調製し、次いで、その混合物を乳化することからなる、アスファルトを水に乳化させる方法に関する。

本発明第九の態様は、アスファルトの乳化のためという、本発明第五の態様の乳化用組成物の用途に関する。

また、本発明者らは、その乳剤を用いて施工された舗装体に、特に大きい強度及び耐久性が要求される場合に適用可能なアスファルト乳剤についても、鋭意研究した。その研究の結果、本発明者らは、アスファルト乳剤を調製する際、(A) 特定の脂肪族アミン、アミノ化リグニン、炭素数 7 以上の、好ましくは 8 以上の炭化水素基を有するイミダゾリン、炭素数 7 以上の、好ましくは 8 以上の炭化水素基を有するペタイン及び炭素数 7 以上の、好ましくは 8 以上の炭化水素基を

有するアミドベタインからなる群から選ばれた少なくとも一種の界面活性剤と、(B) ポリフェノール性化合物、及び、任意に、(C) アニオン性高分子分散剤、ヒドロキシカルボン酸及びヒドロキシカルボン酸の水溶性塩、及び(D) 糖類、糖アルコール類及び多価アルコール類からなる群から選ばれた少なくとも一種を添加することにより、アスファルト乳剤の、乳剤安定性、骨材との混合性、セメントとの混合性及びその分解時間のコントロールの容易性が改善され、アスファルト等の乳剤の破壊物中の成分の碎石への付着性も改善され、かつ、その乳剤を用いて施工された舗装体の剥離抵抗性、強度及び耐久性が高められることを見い出した。本発明は、この知見を基に完成された。

即ち、本発明第十の態様は、(A-1) 下記式(1) で表された脂肪族アミン、アミノ化リグニン、炭素数7以上の、好ましくは8以上の炭化水素基を有するイミダゾリン、炭素数7以上の、好ましくは8以上の炭化水素基を有するベタイン及び炭素数7以上の、好ましくは8以上の炭化水素基を有するアミドベタインからなる群から選ばれた少なくとも一種と、(B) ポリフェノール性化合物からなるアスファルト乳剤用組成物に関する：

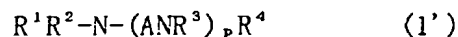


式中、 $\text{R}^1$ は、炭素数8～22の、炭化水素基又はアシル基であり、 $\text{R}^2$ は、炭素数8～22の炭化水素基、水素原子又は式： $(\text{AO})_m - \text{H}$  [式中、 $\text{AO}$ は、炭素数2又は3のオキシアルキレン基を、 $m$ は、1～30の数を示す。] で示される基であり、 $\text{R}^3$ は、水素原子又は式： $(\text{AO})_m - \text{H}$  [式中、 $\text{AO}$ 及び $m$ は、前記定義の通りである。] で示される基であり、 $\text{R}^4$ は、水素原子又は式： $(\text{AO})_m - \text{H}$  [式中、 $\text{AO}$ 及び $m$ は、前記定義の通りである。] で示される基であり、 $\text{A}$ は、エチレン基又はプロピレン基であり、且つ、 $p$ は、2～5の整数である。

本発明第十の態様のアスファルト乳剤用組成物は、更に、(C) アニオン性高分子分散剤、ヒドロキシカルボン酸及びヒドロキシカルボン酸の水溶性塩からなる群から選ばれた少なくとも一種、及び／又は、(D) 糖類、糖アルコール類及び多価アルコール類からなる群から選ばれた少なくとも一種を含有していてもよい。

また、本発明第十一の態様は、アスファルト、水、及び本発明第十一の態様のアスファルト乳剤用組成物からなるアスファルト乳剤に関する。

本発明第十一の態様のアスファルト乳剤は、アスファルト40～80重量部と水60～20重量部との合計100重量部に対して、(A) 下記式(1') で表される脂肪族アミン、アミノ化リグニン、炭素数8以上の炭化水素基を有するイミダゾリン、炭素数8以上の炭化水素基を有するベタイン及び炭素数8以上の炭化水素基を有するアミドベタインの中から選ばれる1種以上の界面活性剤0.01～10.0重量部、及び(B) ポリフェノール性化合物0.01～5.0重量部含有することを特徴とするアスファルト乳剤を包含する：



(式中、 $R^1$  : 炭素数8～22の炭化水素基又はアシル基、

$R^2$  : 炭素数8～22の炭化水素基又は $R^3$ 、

$R^3, R^4$  : H 又は  $(AO)_m$ 、

$AO$  : 炭素数2～3のオキシアルキレン基、

$m$  : 1～30の数、

$A$  : エチレン基又はプロピレン基、

$p$  : 2～5の数、

を表す)。

更に、本発明第十二の態様は、骨材と、本発明第十一の態様のアスファルト乳剤からなり、骨材とアスファルト乳剤との合計100重量部に対し、骨材の量は75～95重量部であり、アスファルト乳剤の量は25～5重量部である、道路舗装等

に用いられる舗装用組成物に関する。

本発明第十三の態様は、アスファルト乳剤の調製という、本発明第十の態様のアスファルト乳剤用組成物の用途に関する。

本発明第十四の態様は、水、(A-1) 上記式(1) で表された脂肪族アミン、アミノ化リグニン、炭素数7以上、好ましくは8以上の炭化水素基を有するイミダゾリン、炭素数7以上、好ましくは8以上の炭化水素基を有するベタイン及び炭素数7以上、好ましくは8以上の炭化水素基を有するアミドベタインからなる群から選ばれた少なくとも一種、及び(B) ポリフェノール性化合物からなる乳化用組成物に関する。

本発明第十四の態様の乳化用組成物は、更に、前記(C) 及び(D) 成分を含有していてもよい。

本発明第十五の態様は、(B) 成分の水溶液に、(A-1) 成分と(D) 成分との混合物を添加し、水溶液を調製する工程1、及び、得られた水溶液に、(C) 成分の水溶液を添加する工程2からなる、(C) 及び(D) 成分を含有する本発明第十四の態様の乳化用組成物の調製方法に関する。

本発明第十六の態様は、(B) 成分の水溶液に、一塩基酸を添加し、酸性水溶液を調製する工程1、その酸性水溶液に、(A-1) 成分と(D) 成分との混合物を添加し、水溶液を調製する工程2、及び、得られた水溶液に、(C) 成分の水溶液を添加する工程3からなる、(C) 及び(D) 成分と一塩基酸を含有する本発明第十四の態様の乳化用組成物の調製方法に関する。

本発明第十七の態様は、本発明第十四の態様の乳化用組成物に、熔融アスファルトを加え、混合物を調製し、次いで、その混合物を乳化することからなる、アスファルトを水に乳化させる方法に関する。

本発明第十八の態様は、アスファルトの乳化のためという、本発明第十四の態様の乳化用組成物の用途に関する。

さらに、本発明の範囲及び適用は、以下の詳細な説明及び実施例から明らかとなろう。しかし、この詳細な説明から、当業者であれば、本発明の意図および範囲内の様々な変更および修飾が明らかであろうから、詳細な説明と実施例は、本発明の好適な態様を示しているが、説明のために示されるにすぎないことを理解すべきである。

発明の詳細な説明：

本発明における(A)成分は、カチオン性、ノニオン性、アニオン性及び両性界面活性剤のうち、いずれでもよい。乳化剤(A)は、一種のみを使用してもよく、あるいは、二種以上からなる多成分系であってもよい。混合用アスファルト乳剤の調製のためには、カチオン性及び両性界面活性剤からなる群から選ばれた少なくとも一種を用いることが好ましい。

本発明で用いられるアニオン性界面活性剤の例としては、次の、親水基を分子中に一個又は二個持つものが挙げられる：

- (a) 炭素数4～18のアルニールの硫酸エステル、及びそれらの塩、
- (b) 炭素数4～18のアルカン-、アルケン-及びアルキルアリールスルホン酸及びそれらの塩、
- (c) 活性水素を分子中に少なくとも一個持つ化合物のアルキレンオキサイド付加物の、硫酸化物及びリン酸エステル化物、及びそれらの塩、
- (d) 炭素数4～22のアルコールとスルホコハク酸とのエステル、及びそれらの塩、
- (e) アルキル(C<sub>8-18</sub>)ジフェニルエーテルジスルホン酸及びそれらの塩、
- (f) ロジン酸(樹脂酸)及びそれらの塩、及びロジン酸と高級脂肪酸との混合酸であるトール油混酸とそれらの塩、。
- (g) 炭素数4～18のアルカン-及びアルケン脂肪酸、及びそれらの塩、及び
- (h)  $\alpha$ -スルホ脂肪酸エステル塩。

カチオン性界面活性剤の例としては、アルキルアミン塩類、アルカノールアミ

ン類、第四級アンモニウム塩類、アミノオキサイド類、ポリエチレンポリアミン類が挙げられ、かつ、これらの化合物のエチレンオキサイド及び／又はプロピレンオキサイド付加物も、その例に含まれる。

本発明では、それを含有する混合用乳剤が、骨材との混合性や、分解時間のコントロールの容易さ等のその乳剤に要求される性能を満足するためには、乳化剤(A)として、一分子中に含まれる窒素原子の数が多きカチオン性界面活性剤を用いるのがよい。そのようなカチオン性界面活性剤は、極性が高く、従って、保水性も高いため、骨材と混合された際に、その界面活性剤を含有するアスファルト乳剤が高い安定性を示す。特に、混合用乳剤の調製には、このようなカチオン性界面活性剤を用いることが好ましい。

その理由は、次の通りである。道路舗装用に使用される骨材は、負電荷を有している。そのため、カチオン性界面活性剤からなるアスファルト乳剤が骨材表面に接触すると、乳化粒子は電氣的に中和され、それによって乳化系は凝集により破壊され、骨材表面にアスファルトが付着する。混合用乳剤の調製に際し、モノアミン塩、ジアミン塩、第四級アンモニウム塩のように、一分子中に含まれる窒素の数が少ないものを用いると、得られた乳剤の安定性が不充分となり、上記した機構に基づくエマルジョン破壊が短時間の中に生じることがある。即ち、分解時間が短すぎるという事態を招くおそれがある。

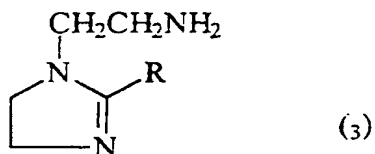
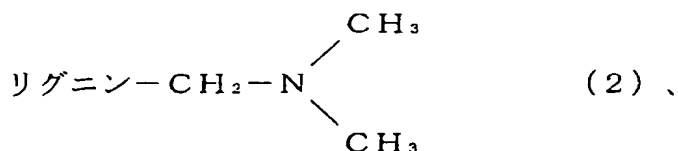
一方、一分子中に含まれる窒素の数が三以上のポリアミン塩類は、アスファルト乳剤の連続相を構成する水との親和性が高く、それが骨材と接触しても、短時間で分解される、即ちエマルジョン破壊が起こる、ことはない。しかも、乳剤が分解してポリアミン塩が骨材に付着した後は、それが骨材と電氣的に結合するため、強固な付着性が示される。従って、混合用乳剤の調製に用いる界面活性剤としては、そのようなポリアミン類が望ましい。

本発明第一～九の態様では、特に、上記式(1)で表された脂肪族アミンを、ポ

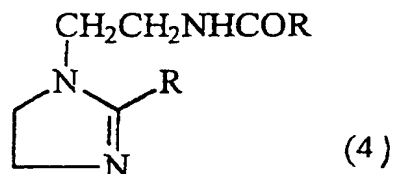
リフェノール性化合物(B)等と共に用いることが好ましい。そのような脂肪族アミンとポリフェノール性化合物(B)とを含有するアスファルト乳剤は、骨材との混合性に著しく優れ、かつ、そのような乳剤を用いて施工された舗装体は、強度及び耐久性が著しく高い。また、本発明第十～十八の態様では、用いられる界面活性剤の種類が(A-1)成分に限定されるが、上記式(1)で表された脂肪族アミンは、(A-1)成分の一種である。

その他の好ましいカチオン性界面活性剤の例としては、アミノ化リグニン及び炭素数7以上、好ましくは8以上、更に好ましくは8～22、の炭化水素基を有するイミダゾリンが挙げられる。これらのカチオン性界面活性剤とポリフェノール性化合物(B)とを含有するアスファルト乳剤は、骨材との混合性に著しく優れ、かつ、そのような乳剤を用いて施工された舗装体は、強度及び耐久性が著しく高い。また、本発明第十～十八の態様では、用いられる界面活性剤の種類が(A-1)成分に限定されるが、アミノ化リグニン及び炭素数7以上の炭化水素基を有するイミダゾリンは、(A-1)成分の一種である。

アミノ化リグニンの中では、下記式(2)で表されたものが特に好ましく、炭素数7以上の炭化水素基を有するイミダゾリンの中では、下記式(3)及び(4)で表されたものが特に好ましい：



式中、Rは、炭素数7～22、好ましくは8～22の炭化水素基を表す、及び



式中、Rは、炭素数7～22、好ましくは8～22の炭化水素基を表す。

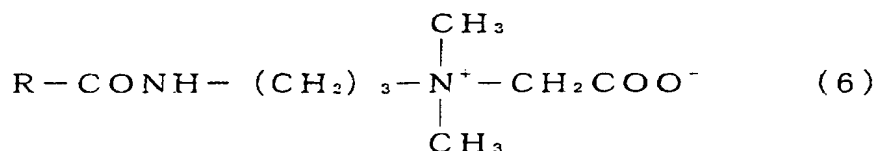
第四級アンモニウム塩以外のカチオン性活性剤は、その、塩酸、酢酸、硝酸、スルファミン酸等の一塩基酸との塩の形で使用される。

両性界面活性剤の例としては、ベタイン型及びアミノベタイン型のもの、及びホスファチジルコリン、ホスファチジルセリン及びホスファチジルエタノールアミン等のリン脂質が挙げられる。これらの中、炭素数7以上、好ましくは8以上、更に好ましくは8～22、の炭化水素基を有するベタイン、及び炭素数7以上、好ましくは8以上、更に好ましくは8～22、の炭化水素基を有するアミドベタインが、カチオン性界面活性剤の場合と同様の理由で、望ましい。

炭素数7以上の炭化水素基を有するベタインの中では、下記式(5)で表されたものが特に好ましく、炭素数7以上の炭化水素基を有するアミドベタインの中では、下記式(6)で表されたものが特に好ましい：



式中、Rは、炭素数7～22の、好ましくは8～22の炭化水素基を表す、及び



式中、Rは、炭素数7～22の、好ましくは8～22の炭化水素基を表す。



ノニオン性界面活性剤の例としては、高級アルコールのエチレンオキサイド付加物、アルキルフェノールのエチレンオキサイド付加物、脂肪酸のエチレンオキサイド付加物、多価アルコール／脂肪酸エステルのエチレンオキサイド付加物、高級アルキルアミンのエチレンオキサイド付加物、脂肪酸アミドのエチレンオキサイド付加物、油脂のエチレンオキサイド付加物、ポリプロピレングリコールのエチレンオキサイド付加物等のポリエチレングリコール型界面活性剤、及びグリセロール／脂肪酸エステル、ペンタエリスリトール／脂肪酸エステル、ソルビトール／脂肪酸エステル、ソルビタン／脂肪酸エステル、ショ糖／脂肪酸エステル、多価アルコールのアルキルエーテル、アルカノールアミン類の脂肪酸アミド等の多価アルコール型界面活性剤が挙げられる。

乳化剤(A) として、そのHLBが10以上のものを用いるのが望ましい。

本発明に係るアスファルト乳剤においては、成分(A)又は(A-1)は、アスファルトと水との合計 100重量部に対して、好ましくは0.01～10重量部、更に好ましくは0.05～3.0 重量部の量で使用される。

本発明で用いられる (B)ポリフェノール性化合物には、ベンゼン環等の芳香環上に水酸基を有し、そのような水酸基の数が、一分子当たり二個以上であるもの(単環性化合物と多環性化合物を含む)、そのような化合物が酸化重合してなる物質等が含まれる。その具体例としては、五倍子タンニン、没食子タンニン、スマックタンニン、タラタンニン、バロニアタンニン、チェスナットタンニン、ミロバランタンニン、オーク(カシワ)タンニン、ディビディビタンニン、アルガロビアタンニン等の加水分解型タンニンや、ガンビアタンニン、ケブラチョタンニン、ミモザタンニン、マングローブタンニン、ヘムロックタンニン、スプルースタンニン、ビルマカッチタンニン、カシワ樹皮タンニン、カキ渋タンニン等の縮合型タンニン、ライスタンニン、カスカローテタンニン、アカシアタンニン、デジプト、中国タンニン、トルコ産タンニン、ハマメリタンニン、ケブリン酸、

エラール酸タンニンといったタンニン化合物、これらのタンニン化合物に由来する精製タンニン酸、カテコール、レゾルシノール、ハイドロキノン、ピロガロール、フロログルシノール、没食子酸等の多価フェノール、没食子酸誘導体、及びリグニンを挙げることができる。本発明第一の態様のアスファルト乳剤用添加剤組成物、及びそれを用いたアスファルト乳剤等においては、(B)成分として、タンニン化合物、タンニン酸、カテコール、レゾルシノール、ハイドロキノン、ピロガロール、没食子酸及び没食子酸誘導体からなる群から選ばれた少なくとも一種を用いるのが好ましく、タンニン化合物、タンニン酸及びピロガロールからなる群から選ばれた少なくとも一種を用いるのが更に好ましい。また、本発明第十の態様のアスファルト乳剤用組成物、及びそれを用いたアスファルト乳剤等においては、(B)成分として、タンニン化合物、タンニン酸、カテコール、レゾルシノール、ハイドロキノン、ピロガロール、没食子酸及び没食子酸誘導体からなる群から選ばれた少なくとも一種を用いるのが好ましい。

本発明においては、(B)成分として、これらを単独で、又はこれらの中の二種以上を混合して使用することができる。その使用量は、本発明第二の態様のアスファルト乳剤等では、アスファルトと水の合計 100重量部に対して、好ましくは 0.01～10.0 重量部、更に好ましくは 0.1～3.0 重量部であり、本発明第十一の態様のアスファルト乳剤等では、アスファルトと水の合計 100重量部に対して、好ましくは 0.01～5.0 重量部、更に好ましくは 0.03～4.0 重量部、特に好ましくは 0.05～3.0 重量部である。

本発明では、ポリフェノール性化合物(B)として、そのアセチル化後のゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)測定による分子量分布において、クロマトグラム上、重量平均分子量が2800以上の成分の絶対面積百分率が10%以下であるものを用いるのが好ましい。このようなポリフェノール性化合物は、ポリフェノール性化合物をカラムクロマトグラフィーにより分別することに

より、得ることができる。

ポリフェノール性化合物をアセチル化し、得られた誘導体について、GPCによって分子量（分布）を測定する方法は、以下の通りである。

〔アセチル化法〕

高分子分析ハンドブック（P. 783～784、1995年、紀伊国屋書店刊）の記載に従い、試料をアセチル化する。すなわち、充分乾燥させた試料 2 g を、50ml 共栓付き三角フラスコ中に採り、氷冷しながらピリジン 10ml 及び無水酢酸 10ml をそれに加え、試料を溶解させる。発熱が無くなった時点で、フラスコに密栓をし、その後、フラスコを室温（20℃）、暗所に 12 時間放置する。次いで、フラスコ内容物を、氷水 100ml の入った 200ml ビーカーに注ぎ、アセチル化物を析出させる。析出物を濾取し、氷水で洗浄後、窒素ガスにより風乾し、次いで常温で減圧乾燥する。このようにして、アセチル化物を得る。

〔GPC 測定条件〕

サンプルサイズ：0.5 %、100ml

カラム：G4000HXL + G2000HXL（東ソー製）

溶離液：50mM  $\text{CH}_3\text{COOH}$  / THF

流速：1.0 ml / min

カラム温度：40℃

検出器：RI

標準物質：ポリスチレン。

その骨材に対する付着性の観点から、ポリフェノール性化合物(B)として、そのアセチル化後の分子量分布において、クロマトグラム上、重量平均分子量が 2800 以上の成分の絶対面積百分率が 10% 以下、更には 5 % 以下、特には 1 % 以下であるものが好ましい。また、アセチル化後の分子量分布において、クロマトグラム上、重量平均分子量が 1500～2600 の成分の絶対百分率が 90% 以上、特には 95

%以上であるものが好ましい。更に、アセチル化後の分子量分布において、重量平均分子量(Mw)の数平均分子量(Mn)に対する比(Mw/Mn)が1.4以下、更には1.3以下、特には1.2以下であるものが好ましい。

アスファルト乳剤へのポリフェノール性化合物(B)の添加によってもたらされる効果は、これらの化合物が、疎水性骨格と親水性基(水酸基)とを同時に有するという、その界面活性剤的化学構造に起因するものである。このような化学構造であるために、ポリフェノール性化合物(B)は、その湿潤浸透作用でアスファルト粒子表面に吸着し、その状態で、多数の水酸基による水和構造により、アスファルト粒子のまわりに保護層を形成する。そのために、アスファルト粒子が乳剤中で安定化され、乳剤が骨材と混合されても、急分解しない。また、吸湿状態にある骨材は、その表面に水酸基を有しているため、それらの水酸基がポリフェノール性化合物(B)の水酸基との間で水素結合する。その水素結合に、アスファルト自体の骨材への物理的吸着が伴って、アスファルトが骨材に強固に付着するものと推測される。

本発明では、(C)成分として、アニオン性高分子分散剤、ヒドロキシカルボン酸及びヒドロキシカルボン酸の水溶性塩からなる群から選ばれた少なくとも一種を用いる。

本発明において用いられるアニオン性高分子分散剤の例としては、ナフタレンスルホン酸/ホルムアルデヒド縮合物、メラミンスルホン酸/ホルムアルデヒド縮合物、フェノールスルホン酸/ホルムアルデヒド縮合物、ポリカルボン酸共重合体及びこれらの水溶性塩、針葉樹及び広葉樹から得られるクラウトリグニン、リグニンスルホン酸及びこれらの水溶性塩、及びタピオカ澱粉等の澱粉類が挙げられる。これらの中でも、リグニンスルホン酸、及びリグニンスルホン酸の、Na塩、Ca塩、Mg塩、Zn塩、Al塩等の水溶性塩が好ましい。

本発明では、(C)成分として、これらのアニオン性高分子分散剤に替って、又

はそれと共に、ヒドロキシカルボン酸あるいはその水溶性塩を使用しても良い。ヒドロキシカルボン酸の例としては、グルコン酸、グルコヘプトン酸、アラボン酸、リンゴ酸及びクエン酸が挙げられる。また、その水溶性塩とは、そのNa塩等をいう。本発明では、特に、グルコン酸ナトリウムが好ましく使用される。

本発明第二の態様のアスファルト乳剤等では、アスファルトと水の合計 100重量部に対して、この(C)成分と後記する(D)成分との合計が、好ましくは0.01～10重量部、更に好ましくは0.01～2.0重量部、特に好ましくは0.05～2.0重量部となるような量で、(C)成分を用いる。その場合、(C)成分の使用量も、アスファルトと水の合計 100重量部に対して、好ましくは0.01～10重量部、更に好ましくは0.01～2.0重量部、特に好ましくは0.05～2.0重量部である。一方、本発明第十一の態様のアスファルト乳剤等では、アスファルトと水の合計 100重量部に対して、好ましくは0.01～10重量部、更に好ましくは0.01～2.0重量部、特に好ましくは0.05～2.0重量部の量で、(C)成分を用いる。(C)成分の量、又は(C)及び(D)成分の合計量が多過ぎる場合には、アスファルト乳剤の貯蔵安定性が悪くなる場合がある。(C)成分は、従来から、無機物やセメント用の分散剤として適用されている物質であり、粘土質骨材あるいはフィラーとして使用される石粉、炭酸カルシウム、セメントの、混合性及び分散性の改良に、効果を発揮する。

本発明における(D)成分は、糖類、糖アルコール類及び多価アルコール類からなる群から選ばれた少なくとも一種である。

本発明において用いられる糖類の例としては、グルコース、マルトース、フラクトース、ガラクトース、サッカロース、異性化糖等の単糖及び二糖類や、デキストリン等のオリゴ糖、及びデキストラン等の多糖類が挙げられる。また、これらを含む糖蜜類も、本発明の糖類に含まれる。糖アルコール類の例としては、ソルビトールが挙げられる。多価アルコール類は、それが、分子中に二個以上の水酸基を有し、水に溶解するものでありさえすれば良く、その例としては、ポリエ

チレングリコール、グリセリン、エチレングリコール、プロピレングリコール、ポリグリセリン、及びジエチレングリコールが挙げられる。本発明において、ポリエチレングリコールを用いる場合は、平均分子量が 200～5000のものが好ましい。

本発明第一の態様のアスファルト乳剤用添加剤組成物、及びそれを含むアスファルト乳剤や乳化用組成物において用いられる(D)成分としては、ソルビトール、グリセリン、平均分子量が 200～5000のポリエチレングリコールからなる群から選ばれた少なくとも一種が好ましく、ソルビトール、グリセリン、平均分子量が200～800のポリエチレングリコールからなる群から選ばれた少なくとも一種がより好ましく、グリセリンが特に好ましい。一方、本発明第十の態様のアスファルト乳剤用組成物、及びそれを含むアスファルト乳剤や乳化用組成物において用いられる(D)成分としては、マルトース、サッカロース、ソルビトール、グリセリン、平均分子量が 200～5000のポリエチレングリコールからなる群から選ばれた少なくとも一種が好ましく、ソルビトール、平均分子量が 200～5000のポリエチレングリコール及びグリセリンからなる群から選ばれた少なくとも一種がより好ましく、平均分子量が 200～800 のポリエチレングリコールが最も好ましい。

本発明第二の態様のアスファルト乳剤等では、アスファルトと水の合計 100重量部に対して、この(D)成分と前記(C)成分との合計が、好ましくは0.01～10重量部、更に好ましくは0.01～2.0重量部、特に好ましくは0.05～2.0重量部となるような量で、(D)成分を用いる。その場合、(D)成分の使用量は、アスファルトと水の合計 100重量部に対して、好ましくは0.01～10重量部、更に好ましくは0.05～2.0重量部である。一方、本発明第十一の態様のアスファルト乳剤等では、アスファルトと水の合計 100重量部に対して、好ましくは0.01～10重量部、更に好ましくは0.05～2.0重量部の量で、(D)成分を用いる。(D)成分の量、又は(C)及び

(D) 成分の合計量が多過ぎる場合には、アスファルトの骨材に対する付着性が悪くなり、そのため、そのようなアスファルト乳剤を用いて施工された舗装体の強度及び耐久性が低下する。(D) 成分は、舗装用組成物中において、滑剤となる水を保持することができるため、固体粒子（骨材）間の滑性度を高めるのに役立つ。換言すれば、(D) 成分は、本発明第三及び十二の態様の舗装用組成物において、その流動性向上に寄与する。従って、(D) 成分が存在すると、気温の高い厳しい条件下においても、アスファルト乳剤の骨材との混合性が確保され得、前記舗装用組成物の作業性が保持されうる。

本発明のアスファルト乳剤用添加剤組成物及びアスファルト乳剤用組成物は、アスファルト乳剤の調製に使用される。本発明第一の態様のアスファルト乳剤用添加剤組成物は、(B)、(C)および(D)成分を必須とし、任意に乳化剤(A)を含有する。乳化剤(A)を含有しているいないに関わらず、そのアスファルト乳剤用添加剤組成物は、適当な乳化剤、水及びアスファルトと共に使用されて、アスファルト乳剤となる。あるいは、アスファルト乳剤用添加剤組成物が乳化剤(A)を含有している場合には、アスファルト乳剤の調製に際し、更に乳化剤を加えなくともよい。また、本発明第十の態様のアスファルト乳剤用組成物は、(A-1)及び(B)成分を必須とし、任意に(C)及び(D)成分を含有する。このアスファルト乳剤用組成物は、水及びアスファルトと共に使用されて、アスファルト乳剤となる。もちろん、更に他の乳化剤を加えてもよい。

本発明のアスファルト乳剤用添加剤組成物及びアスファルト乳剤用組成物の概念には、それらの構成成分がそれぞれ包装されてなるキット等も含まれる。

アスファルト乳剤の調製に際し、(A)[又は(A-1)]、(B)、(C)及び(D)成分の中の必要な成分を、各々水に溶解させ、水溶液とし、それらの水溶液を適宜用いてアスファルトを乳化させてもよいが、本発明第五及び第十四の態様の乳化用組成物を用いることが好ましい。これらの乳化用組成物には、アスファルト乳剤の構

成分の中、アスファルト以外の全成分を含有せしめることが出来るので、これらの組成物を用いれば、アスファルト乳剤を容易に調製することができる。これらの乳化用組成物が、アミン系界面活性剤等のカチオン性界面活性剤を含有する場合には、乳化用組成物は、それを酸型にするための一塩基酸を含有することもある。

乳化用組成物は、水に、各成分を順次添加することにより、あるいは、予め、水に添加される成分の混合物を調製しておき、その混合物を水に添加することにより、調製され得る。乳化剤(A)[又は(A-1)]として、第四級アンモニウム塩系界面活性剤以外のカチオン性界面活性剤及び／又は両性界面活性剤を用いる場合には、前記した本発明第六、七、十五及び十六の態様の方法で、乳化用組成物を調製することが好ましい。

また、

- (1) (B) 成分の水溶液を調製する、
- (2) (B) 成分水溶液に、塩酸等の一塩基酸を添加する、
- (3) 別途用意した、(D) 成分と、カチオン性界面活性剤及び／又は両性界面活性剤 [(A) 又は (A-1) 成分] との混合物を、工程 (2) で調製した水溶液に添加する、及び
- (4) 別途用意した (C) 成分の水溶液を、(3) で調製した水溶液に添加する、

ことからなる方法 (手順 1)、及び、

- (1) (B) 及び (C) 成分を含む水溶液を調製する、
- (2) (1) で調製した水溶液に、塩酸等の一塩基酸を添加する、及び
- (3) 別途用意した、(D) 成分と、カチオン性界面活性剤及び／又は両性界面活性剤 [(A) 又は (A-1) 成分] との混合物を、工程 (2) で調製した水溶液に添加する、



ことからなる方法（手順２）は、本発明の乳化用組成物の調製方法として、更に好ましい。これらの方法を実施する際の温度は、60～80℃が好ましい。また、乳化用組成物は、その固形分濃度が40～60重量％であるのがよい。

このような方法で乳化用組成物を調製すると、均質な一液型の組成物が得られる。上記手順１及び２において、項目（２）は、用いる界面活性剤の種類によっては省略される。上記手順１及び２の使い分けは、特に必要ないが、固体状アミンのアルキレンオキサイド付加物のような、温度や濃度等の条件によっては液状とすることができるものを、乳化剤（Ａ）[又は（Ａ-１）]として用いる場合には、手順１の採用が好ましい。また、乳化剤（Ａ）[又は（Ａ-１）]が、牛脂アルキルジアルキレントリアミン等の水と混合することが困難な固体状のものである場合には、手順２の採用が好ましい。乳化剤（Ａ）[又は（Ａ-１）]として、カチオン性界面活性剤、両性界面活性剤に替わって、あるいはそれらと共に、ノニオン性界面活性剤、アニオン性界面活性剤又は第四級アンモニウム塩系界面活性剤を用いる場合には、それらは、上記手順１及び２において、どの工程で添加してもよい。

また、（Ａ）、（Ｂ）及び（Ｃ）成分からなる乳化用組成物は、（Ｂ）成分の水溶液に（Ａ）成分を添加し、水溶液を調製する工程１、及び、得られた水溶液に（Ｃ）成分の水溶液を添加する工程２からなる方法、あるいは、（Ｂ）成分の水溶液に、一塩基酸を添加し、酸性水溶液を調製する工程１、その酸性水溶液に（Ａ）成分を添加し、水溶液を調製する工程２、及び、得られた水溶液に、（Ｃ）成分の水溶液を添加する工程３からなる方法、で調製することが好ましい。

更に、（Ａ）、（Ｂ）及び（Ｄ）成分からなる乳化用組成物は、（Ｂ）成分の水溶液に、（Ａ）成分と（Ｄ）成分との混合物を添加し、水溶液を調製する工程からなる方法、あるいは、（Ｂ）成分の水溶液に、一塩基酸を添加し、酸性水溶液を調製する工程１、及び、その酸性水溶液に、（Ａ）成分と（Ｄ）成分との混合物を添加し、水溶液を調製する工程２からなる方法、で調製することが好ましい。

本発明において用いられるアスファルトの例としては、石油ストレートアスファルト、セミブローンアスファルト、カットバックアスファルト及び天然アスファルトが挙げられる。本発明のアスファルト乳剤の調製に際しては、これらの中の一種が、あるいはこれらの中の二種以上の混合物が用いられる。

アスファルト乳剤は、上記(A)[又は(A-1)]、(B)、(C)及び(D)成分の中の必要な成分を各々含む水溶液、あるいはそれらの必要成分すべてを含む水溶液（例えば本発明の乳化用組成物）に、アスファルトを乳化させることによって調製される。成分によっては、水溶液の形態ではなく、そのまま用いられる。例えば、ポリフェノール性化合物(B)は、乳化剤(A)の水溶液に予め溶解させておいてもよいし、あるいは、乳化剤(A)の水溶液にアスファルトを乳化して調製されたアスファルト乳剤に、そのままの形態で添加してもよい。水溶液に由来する水のみで、アスファルト乳剤が調製される場合もあるが、必要に応じ、更に水を添加して、アスファルト乳剤を調製してもよい。本発明第二の態様のアスファルト乳剤の場合、アスファルトの水に対する重量比率（アスファルト／水）は、35～90／65～10が好ましい。本発明第十一の態様のアスファルト乳剤の場合、アスファルトの水に対する重量比率（アスファルト／水）は、40～80／60～20が好ましい。

本発明のアスファルト乳剤は、更に、天然ゴム、スチレンーブタジエン共重合物、スチレンーイソプレン共重合物、クロロプレン共重合物等の合成ゴム、ポリエチレン、エチレンー酢酸ビニル共重合体等の高分子重合体、石油樹脂、熱可塑性樹脂等を含有していてもよい。これらは、予めアスファルトと混合されている場合がある。そのような混合物は、改質アスファルトと呼ばれている。アスファルト乳剤は、必要により、例えば炭酸カルシウム、消石灰、セメント、活性炭等の無機及び有機充填剤、石油系軟化剤、植物油系軟化剤、各種可塑剤、イオウ等も含有していてもよい。

アスファルト乳剤と骨材からなる舗装用組成物を用いて、道路舗装等が行われ

る。

本発明において用いられる骨材の概念には、フィラー、碎石、玉砕、砂利、砂、再生骨材等の天然骨材や、カルサインドボーキサイト、金属又は非金属を製錬するときに副生される特殊な硬質スラグ、熔融アルミナ、各種の研磨材等の人工骨材が含まれる。骨材の概念には、更に、天然骨材又は人工骨材を焼成した白色の骨材である明色骨材、及び、それらに無機顔料を加えてなる着色骨材も含まれる。

フィラーとは、石灰岩、火成岩類の石粉、セメント、消石灰、フライアッシュ等を指す概念である。

碎石とは、原石を機械的に破碎し、それを、必要に応じて粒度ごとに分級したものである。ここでいう原石とは、火成岩、堆積岩又は変成岩である。火成岩は、その産出状態及びシリカの含有量によって、玄武岩、安山岩、石英粗面岩、輝緑岩、石英斑岩、斑稀岩、閃緑岩、花崗岩等に分けられる。堆積岩の概念には、凝灰岩、集塊岩、レキ岩、頁岩、石灰岩等が含まれ、変成岩の概念には、マイロナイト、ホルンフェルス、片麻岩、結晶石片岩等が含まれる。

玉砕は、玉石又は砂利を砕いたものであり、砂利の概念には、川砂利、山砂利、海砂利等が含まれる。

砂は、天然砂、人工砂、スクリーニングス、特殊な砂等に分類される。天然砂は、その採取場所によって、川砂、山砂、海砂等に分けられる。人工砂は、岩石や玉石を破碎して作られたものであり、スクリーニングスは、碎石、玉砕を作る際に生じる粒径2.36mm以下の細かいものをいう。特殊な砂の概念には、シリカサンド、高炉水砕スラグ、クリンカーアッシュ等が含まれる。

再生骨材の概念には、アスファルトコンクリート舗装発生材を機械破碎または熱解砕して作ったアスファルトコンクリート再生骨材と、セメントコンクリート舗装発生材を機械破碎して作ったセメントコンクリート再生骨材とが含まれる。

これらには、必要に応じて、補足材料や再生用添加剤が加えられている。

鉄鋼スラグとは、鉄鋼の製造過程で生産されるスラグを破碎したものをいう。それは、銑鉄の製造過程で高炉から製錬される高炉スラグと、鋼の製造過程で生成される製鋼スラグに分けられる。道路舗装用としては、一般に、水硬性粒度調製鉄鋼スラグ、粒度調製鉄鋼スラグ、クラッシュラン鉄鋼スラグ等が使用される。

本発明において、アスファルト乳剤に対する骨材の重量比率（骨材／アスファルト乳剤）は、75～95／25～5が好ましい。

道路舗装等に用いられる、アスファルト乳剤と骨材からなる舗装用組成物の調製に際しては、その組成物の使用目的や施工法等によっては、更に、塩化アンモニウム、塩化カリウム、塩化ナトリウム、塩化カルシウム、塩化アルミニウム、塩化鉄等の水溶性無機塩、ポリビニルアルコール、ゼラチン、ヒドロキシエチルセルロース、メチルセルロース、カチオン澱粉等の水溶性高分子、及び水溶性天然ゴム類からなる群から選ばれた少なくとも一種を用いてもよい。また、アスファルト乳剤に由来する水のみでは不足する場合には、更に水が添加される。

以上詳述した如く、本発明によれば、乳剤自体の、貯蔵安定性、骨材との混合性、低発泡性、その破壊物の骨材への付着性、その乳剤を用いて施工された施工物における剥離抵抗性等の、市場が要求する諸性能をすべて満足させるアスファルト乳剤が提供され得る。特に、特定の乳化剤を使用したアスファルト乳剤を用いた場合には、更に、乳剤自体の、セメントとの混合性及び分解時間のコントロールの容易性、その破壊物の碎石への付着性、及びその乳剤を用いて施工された施工物（道路舗装等）における強度及び耐久性に優れる。

このようなアスファルト乳剤は、道路舗装、鉄道線路敷設、セメントアスファルトモルタル、防蝕、防錆、防水処理、接着、農業用地改良材等の用途に、有効に利用することができる。

### 実施例：

以下の実施例を参照しながら、本発明をより詳細に説明する。ただし、当該実施例は、本発明の範囲を限定すると考えるべきではない。

### 実施例 1 ～ 9 及び比較例 10 ～ 17

#### [アスファルト乳剤の調製]

針入度80～100 のアスファルトを 145℃に加熱し、熔融させた。

一方、表 1 又は 2 に示された、アスファルト乳剤に添加される成分を、45℃の温水に溶解させ、水溶液を調製した。このように調製された45℃の乳化用水溶液 40重量部と、145℃の熔融アスファルト60重量部とを、同時にハレル型ホモジナイザーに通し、アスファルト乳剤を調製した。ただし、アミン系界面活性剤（即ち、牛脂アルキルプロピレンジアミン）を使用する場合は、塩酸を使用し、乳化用水溶液のpHを 2 に調整した。

このように調製されたアスファルト乳剤について、その貯蔵安定性、セメントとの混合性、骨材との混合性、及びその破壊物の碎石への付着性を試験した。その結果を表 1 及び 2 に示す。試験方法は、以下に示す通りである。

#### [試験方法]

##### (1) 乳剤の貯蔵安定性

JIS K 2208(1980年)に準じ、乳剤の貯蔵安定性を試験した。具体的には、次のように実験を行った。

- 1) 内径32mm、高さ340mm で、側面に二箇所の試料取り出し口を有するシリンダーに、試料250ml を秤取り、シリンダーに栓をし、シリンダーをその状態で室温にて5日間静置させる。
- 2) シリンダーを動揺させずに、上方の試料取り出し口 A から試料約50 g を採り、精秤する。
- 3) 下方の試料採り出し口 B から、A B間の試料を流出させる。

- 4) シリンダー下部に残った試料を攪拌した後、その試料約50 g を、試料取り出し口Bから取り出し、精秤する。
- 5) 2)及び4)で取り出した試料各々について、20～30分間加熱する。
- 6) 水分が無くなったことを確認してから、更に、160 °Cにて1分間、試料を加熱し、その後室温まで放冷する。
- 7) 蒸発残留物 (g) の試料 (g) に対する質量百分率 (蒸発残量分と称する) を求める。
- 8) 両試料の蒸発残量分の差を求める。

表中には、その実測値と共に、規格に合格する場合、即ち蒸発残量分の数値の差が5 %以下である場合、を○印で、合格しない場合を×印で示す。

#### (2) セメントとの混合性

ASTM D244 33-37 に準じ、乳剤のセメントとの混合性を試験した。具体的には、次のように実験を行った。

- 1) 蒸留もしくは163 °Cで3時間蒸発させた場合の残量分が55%になるように、試料を蒸留水で希釈する。
- 2) NO. 80 (180  $\mu$  m) のふるいでふるわれたセメント50 g を、鉄製の皿又はシチュー鍋に入れる。
- 3) 希釈された試料100mlをセメントに加え、その後直ちに、得られた混合物を攪拌棒にて60rpmで攪拌する。
- 4) 攪拌開始から1分後に、蒸留水150ml を加え、得られた混合物を3分間攪拌する。なお、3)及び4)の工程は、すべて25°Cにて行う。
- 5) 得られた混合物を、No. 14 (1.40mm) のふるいにそそぎ込む。容器に付着した混合物も、容器をろ液で繰り返し洗うことにより、すべてふるいにそそぎ込む。
- 6) ふるい上の残量物を、蒸留水で十分にすすぐ。

- 7) 163℃ で、ふるい上の残留物を加熱する。
- 8) 加熱による重量の変化が0.1 g 以下となった時点の重量 (g) を、セメント混合試験のエマルジョン破壊残分 (%) とする。

表中には、その実測値と共に、規格に合格する場合、即ち、2 %以下である場合、を○印で、合格しない場合を×印で示す。

### (3) 碎石への付着性

直径が5～13mmの乾燥碎石を、水中に1分間浸漬した。水から取り出した直後に、その碎石を乳剤中に1分間浸漬した。乳剤から取り出された碎石をガラス板上に並べ、そのまま室温にて24時間養生させた。養生後、碎石を80℃の温水に1時間浸漬した。温水から取り出された1時間後に、碎石の表面を被覆しているアスファルト皮膜の面積割合を、肉眼で判定し、それを付着面積率 (%) とした。但し、1回の試験で用いた碎石の数は10個とし、碎石の種類は石灰岩であった。

表中には、10個の碎石のアスファルト付着面積率 (%) の平均値と、下記基準に基づく判定結果を示す。

- × : アスファルト付着面積率が50%未満である、
- △ : " 50%以上70%未満である、
- : " 70%以上90%未満である、及び
- ◎ : " 90%以上である。

### (4) 骨材との混合性

道路舗装要綱に記載されている密粒度混合用骨材の粒度分布に適合する、即ち下記表Aに記載の粒度分布を有する、乾燥骨材2200グラムに、添加水60グラムを加えた。得られた混合物を攪拌後、アスファルト乳剤 240グラムをそれに添加した。得られた混合物を2分間混練りし、その際のアスファルト乳剤と骨材との混合性を、下記基準で評価した。試験温度 (評価時の温度) は25℃であり、混合には、ワールドテスト (株) 製のアスファルト混合物調製用ミキサー (容量 : 5

リットル) を用いた。

表中には、下記基準に基づく判定結果を示す。

×： 混練り中に乳剤が分解（即ち、エマルジョン破壊）した、

△： 均等に混合されたが、その直後に乳剤が分解した、

○： 均等に混合されたが、乳剤の作業可能時間（乳剤が分解するまでの時間）が短い、及び

◎： 均等に混合され、かつ、乳剤は、作業可能時間が充分長く、作業性が良い。

表 A

最大粒径    mm		20
通 過 質 量 百 分 率  %	26.5   mm	100
	19     mm	95～100
	13.2   mm	75～ 90
	4.75   mm	45～ 65
	2.36   mm	35～ 50
	600 $\mu$ m	18～ 30
	300 $\mu$ m	10～ 21
	150 $\mu$ m	6～ 16
	75 $\mu$ m	4～ 8



表 1

添加剤（重量部）		実施例								
		1	2	3	4	5	6	7	8	9
(A) 成分										
アルキル（C <sub>18</sub> ）トリメチルアンモニウムクロライド		0.5	0.5					0.5		
牛脂アルキルプロピレンジアミン*				0.5			0.2		0.5	0.5
ポリオキシエチレン（PEO=50）ノニルフェニルエーテル					0.3	0.3				
アミノ化リグニン					0.3		0.4			0.2
ドデシルベンゼン硫酸ナトリウム						0.3				
(B) 成分										
ピロガロール		0.3							0.1	
タンニン酸（試薬）			0.3				0.1	0.3		0.1
ケブラテョタンニン				0.3	0.3	0.3	0.1		0.1	
(C) 成分										
リグニンスルホン酸カルシウム		0.2	0.2		0.1			0.1	0.2	0.1
グルコン酸ナトリウム				0.2		0.1				0.1
(D) 成分										
グリセリン								0.1		0.1
ポリエチレングリコール（Mw=600）									0.1	
ソルビトール							0.2			0.1
(A)～(D)成分の合計量**（重量部）		1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
試験結果	乳剤の貯蔵安定性	○ 1.9	○ 1.9	○ 1.1	○ 1.7	○ 1.4	○ 0.2	○ 1.5	○ 0.6	○ 0.7
	セメントとの混合性	○ 0.9	○ 0.9	○ 1.2	○ 0.8	○ 0.1	○ 0.8	○ 0.5	○ 1.2	○ 0.9
	砕石への付着性	◎ 100	◎ 100	◎ 100	◎ 100	◎ 95	◎ 100	◎ 95	◎ 100	◎ 95
	骨材との混合性	○	○	○	○	○	○	◎	◎	◎

注) \* : 牛脂アルキル-NHCH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>NH<sub>2</sub>

\*\* : これは、アスファルトと水との合計 100重量部あたりの量である。

表 2

添加剤 (重量部)		比較例							
		10	11	12	13	14	15	16	17
(A) 成分									
アルキル (C <sub>18</sub> ) トリメチルアンモニウムクロライド		1.5					0.5		
牛脂アルキルプロピレンジアミン*			1.5	0.4				0.5	0.3
ポリオキシエチレン (PEO=50) ノニルフェニルエーテル				0.3					0.2
アミノ化リグニン				0.3	1.0				
ドデシルベンゼン硫酸ナトリウム						0.5			
(B) 成分									
ピロガロール									
タンニン酸 (試薬)							0.5		0.3
ケブラチョタンニン								0.5	0.2
(C) 成分									
リグニンスルホン酸カルシウム						0.5			
グルコン酸ナトリウム									
(D) 成分									
グリセリン									
ポリエチレングリコール (Mw=600)				0.5					
ソルビトール									
(A)~(D)成分の合計量** (重量部)		1.5	1.5	1.5	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
試験結果	乳剤の貯蔵安定性	× 10.2	○ 1.4	○ 0.9	× 8.6	○ 3.0	× 7.9	○ 3.1	○ 4.6
	セメントとの混合性	○ 1.0	× 8.9	× 6.7	× 6.9	○ 1.2	× 3.0	× 10.1	× 7.8
	砕石への付着性	× 45	× 45	× 30	△ 60	× 10	○ 80	○ 80	× 50
	骨材との混合性	×	×	×	×	×	×	×	×

注) \* : 牛脂アルキル-NHCH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>NH<sub>2</sub>

\*\* : これは、アスファルトと水との合計 100重量部あたりの量である。

表1及び2から明らかなように、本発明の実施例は、セメントとの混合性及び骨材との混合性に優れ、かつ、道路舗装体の耐久性に係わるアスファルトの碎石への付着性についても、優れた性能を示した。上記実験は、添加水の少ない密粒度混合系で行われたが、このような厳しい条件下にもかかわらず、実施例では、(A)～(D)成分の複合作用により、良好な混合性が示されたものと考えられる。特に、骨材との混合性については、(A)～(D)成分すべてが用いられた場合（実施例7～9）に、その効果が優れていた。

一方、(A)成分（乳化剤）のみを含む系（比較例10、11及び13）、及び、(A)成分と、(B)（ポリフェノール性化合物）、(C)（アニオン性高分子分散剤）又は(D)（糖類）成分の二成分のみを含む系（比較例12、及び14～17）は、実施例に比べ、骨材との混合性に劣った。また、上記比較例の中、比較例11～13及び15～17は、アスファルト乳剤の、骨材（特に、微粉末状あるいは粘土質のもの）との混合性の良否を示す、「セメントとの混合性」の評価結果が、実施例に比べて明白に劣った。更に、比較例10～12、14及び17は、碎石との付着性においても、実施例と比べて劣っているとの結果しか得られなかった。

このように、本発明の実施例は、乳剤安定性、セメントとの混合性、碎石への付着性及び骨材との混合性という性能のすべてを満足させることができるものである。

実施例101～132及び比較例101～134

〔アスファルト乳剤の調製〕

針入度が60～80、80～100、及び150～200のアスファルトを、各々155℃に加熱し、溶融させた。

一方、表3～12のいずれかに示された界面活性剤と、塩化カルシウムとを、55℃の温水に溶解させ、次いで、表3～12のいずれかに示された界面活性剤以

外の成分をそれに加え、溶解させた。このようにして調製された55℃の乳化用水溶液40重量部と、155℃の熔融アスファルト60重量部とを、同時にコロイドミルに通し、アスファルト乳剤を調製した。表3～12には、このアスファルト乳剤100重量部あたりの各成分の量（単位：重量部）を示した。また、塩化カルシウムは、アスファルト乳剤100重量部あたり0.15重量部を用いた。カチオン性界面活性剤を使用する場合は、塩酸を使用し、乳化用水溶液のpHを2に調整した。

このように調製されたアスファルト乳剤について、その貯蔵安定性、セメントとの混合性、骨材との混合性、分解時間、及びその破壊物の碎石への付着性を試験した。その結果を表3～12に示す。試験方法は、以下に示す通りである。

#### [試験方法]

##### (1) 乳剤の貯蔵安定性

ASTM D244 29-32 に準じ、乳剤の貯蔵安定性を試験した。具体的には、次のように実験した。

- 1) 外径50mmの500ml 容量のシリンダーに、試料500ml を秤取り、シリンダーに栓をし、シリンダーをその状態で室温にて5日間静置させる。
- 2) シリンダーを動揺させずに、シリンダー上方からピペットで試料約55mlを採り、その中の約50 gを1000ml容量のビーカーに入れる。
- 3)  $163 \pm 28^{\circ}\text{C}$  のオープンにて、試料を2時間加熱し、試料中の水分を蒸発させる。
- 4) 蒸発残留物の重量（g）を測定し、蒸発残留物（g）の試料（g）に対する質量百分率（蒸発残量分と称する）を求める。
- 5) シリンダーの上方から、ピペットで試料約390mlを採る。
- 6) シリンダー下部に残った試料をよく攪拌した後、その試料約50 gをシリンダーから採り出し、1000ml容量のビーカーに入れる。
- 7) 3)及び4)の操作を行う。

8) 両試料の蒸発残量分の差を求める。

表中には、その実測値と共に、規格に合格する場合、即ち蒸発残量分の数値の差が5%以下である場合、を○印で、合格しない場合を×印で示す。

(2) 碎石への付着性

実施例1～9における同様の方法で、試験、評価した。

(3) 骨材との混合性

実施例1～9における同様の方法で、試験、評価した。ここで用いた密粒度混合用骨材の粒度分布に適合する乾燥骨材は、碎石6号が34重量%、碎石7号が21重量%、スクリーニングスが17重量%、粗砂が12重量%、細砂が10重量%、及び石粉が6重量%という組成であった。

(4) セメントとの混合性

実施例1～9における同様の方法で、試験、評価した。

(5) 乳剤分解時間

上記の骨材との混合性の試験と同様の条件で、骨材に添加水とアスファルト乳剤とを加え、混合した。混合終了後、得られた混合物を、25℃、30%相対湿度の条件下で静置させた。その混合物の状態を、肉眼で観察し、下記基準で評価した。

×： 静置時間10分未満で乳剤が分解した、

△： 静置時間10分以上60分未満、又は10時間以上で、乳剤が分解した、

○： 静置時間60分以上2時間未満、又は6時間以上10時間未満で、乳剤が分解した、及び

◎： 静置時間2時間以上6時間未満で乳剤が分解した。

また、上記アスファルト乳剤を用い、下記の如くアスファルト乳剤合材を調製し、それを用いて圧裂強度試験を行った。その結果を表3～12に示す。試験方法は、以下に示す通りである。

## [アスファルト乳剤合材の調製方法]

アスファルト乳剤10重量部を、碎石 6 号が34重量%、碎石 7 号が21重量%、スクリーニングスが17重量%、粗砂が12重量%、細砂が10重量%及び石粉が 6 重量%という組成の骨材90重量部と混合し、混合物を調製した。得られた混合物1250グラムを、マーシャル安定度測定用モールドに充填した。その混合物を、75回締め固め、モールドを反転してから、更に75回締め固め、アスファルト乳剤合材を調製した。

## [圧裂強度の試験方法]

上記の方法によって調製されたアスファルト乳剤合材を、モールドから抜き取った。それを60℃で3日間養生後、60℃の温水に24時間浸漬した。合材を温水から取り出し、20℃に冷却した後、荷重測定装置でその圧裂強度を測定した。

表 3

添 加 剤 (重量部)		実 施 例						
		101	102	103	104	105	106	107
A-1 成分	牛脂シ <sup>7</sup> °D <sup>12</sup> °レソトリアミン*	0.5						
	牛脂トリ <sup>7</sup> °D <sup>12</sup> °レソテトラミン*		0.5					
	牛脂テトラ <sup>7</sup> °D <sup>12</sup> °レソヘ <sup>9</sup> ンタミン*			0.5				
	牛脂ヘ <sup>9</sup> ンタ <sup>7</sup> °D <sup>12</sup> °レソヘキサミン*				0.5			
	牛脂シ <sup>7</sup> °D <sup>12</sup> °レソトリアミンE0付加物(n=15)*					0.6		
	牛脂トリ <sup>7</sup> °D <sup>12</sup> °レソテトラミンE0付加物(n=10)*						0.6	
	牛脂トリ <sup>7</sup> °D <sup>12</sup> °レソテトラミンP0付加物(n=10)*							0.6
	牛脂テトラ <sup>7</sup> °D <sup>12</sup> °レソヘ <sup>9</sup> ンタミンP0付加物(n=7)*							
	牛脂アルカノイルシ <sup>7</sup> °エチレソトリアミン**							
	アミノ化リグニン							
	ステアリルイミダゾリン							
	ラウリルベタイン							
B 成分	五倍子タンニン酸	0.3						
	ケブラチョタンニン酸		0.3					
	カテコール			0.5				
	レゾルシノール				0.5			
	ハイドロキノン					0.5		
	ピロガロール						0.4	
	没食子酸							0.3
	没食子酸メテル							
C,D 成分	リグニンスルホン酸カルシウム							
	グルコン酸ナトリウム							
	ポリエチレングリコール (MW=400)							
	グリセリン							
	ソルビトール							
アスファルトの 針入度(1/10mm)		60-80	○		○			○
		80-100		○		○		
		150-200			○		○	
試験結果	圧裂強度(kgf/cm <sup>2</sup> )	4.2	4.2	3.5	3.8	3.6	4.0	4.2
	乳剤の貯蔵安定性	○ 2.5	○ 1.5	○ 1.7	○ 1.7	○ 2.5	○ 1.7	○ 1.9
	砕石への付着性	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
	骨材との混合性	○	○	○	○	○	○	○
	セメントとの混合性	○ 1.1	○ 1.2	○ 1.2	○ 1.1	○ 1.0	○ 1.0	○ 1.1
	乳剤分解時間	○	○	○	○	○	○	○

注： \*： 牛脂アルキル基が、主に末端の窒素原子に結合している化合物である（下表中も同様）。

\*\*： 牛脂アルカノイル基は、主に末端の窒素原子に結合している（下表中も同様）。

表 4

添 加 剤 (重量部)		実 施 例						
		108	109	110	111	112	113	114
A-1 成分	牛脂シブ°Dヒ°レントリアミン						0.3	
	牛脂トリブ°Dヒ°レントラミン							0.2
	牛脂テトラブ°Dヒ°レンペンタミン							
	牛脂ヘンタブ°Dヒ°レンヘキサミン							
	牛脂シブ°Dヒ°レントリアミンE0付加物(n=15)							
	牛脂トリブ°Dヒ°レントラミンE0付加物(n=10)						0.2	
	牛脂トリブ°Dヒ°レントラミンP0付加物(n=10)							0.3
	牛脂テトラブ°Dヒ°レンペンタミンP0付加物(n=7)	0.6						
	牛脂アルカノイルシ°エチレントリアミン		0.5					
	アミノ化リグニン			1.0				
	ステアリルイミダゾリン				0.8			
B 成分	ラウリルベタイン					0.7		
	五倍子タンニン酸			0.1	0.2	0.1	0.2	0.1
	ケブラチョタンニン酸		0.2	0.2				
	カテコール		0.1		0.2			
	レゾルシノール					0.3		
	ハイドロキノン						0.2	
	ピロガロール							0.3
	没食子酸							
C,D 成分	没食子酸メチル	0.5						
	リグニンスルホン酸カルシウム							
	グルコン酸ナトリウム							
	ポリエチレングリコール (MW=400)							
	グリセリン							
	ソルビトール							
	アスファルトの 針入度(1/10mm)	60-80			○			○
		80-100	○	○		○		
		150-200			○		○	
試験結果	圧裂強度(kgf/cm <sup>2</sup> )	3.7	3.9	4.0	4.1	3.7	4.1	4.2
	乳剤の貯蔵安定性	○ 3.0	○ 3.2	○ 3.1	○ 3.5	○ 2.5	○ 1.8	○ 2.0
	碎石への付着性	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
	骨材との混合性	○	○	◎	○	○	○	○
	セメントとの混合性	○ 1.2	○ 1.1	○ 1.0	○ 1.2	○ 1.2	○ 1.1	○ 1.2
	乳剤分解時間	○	○	○	○	○	○	○



表 5

添 加 剤 (重量部)		実 施 例						
		115	116	117	118	119	120	121
A-1 成分	牛脂シブア <sup>®</sup> DE <sup>®</sup> レソトリアミン							
	牛脂トリブア <sup>®</sup> DE <sup>®</sup> レソテトラミン					0.4	0.3	
	牛脂テトラブア <sup>®</sup> DE <sup>®</sup> レソヘンタミン	0.2						
	牛脂ヘンタブア <sup>®</sup> DE <sup>®</sup> レソヘキサミン		0.2					
	牛脂シブア <sup>®</sup> DE <sup>®</sup> レソトリアミンE0付加物(n=15)							
	牛脂トリブア <sup>®</sup> DE <sup>®</sup> レソテトラミンE0付加物(n=10)	0.2		0.3	0.3			0.3
	牛脂トリブア <sup>®</sup> DE <sup>®</sup> レソテトラミンP0付加物(n=10)							
	牛脂テトラブア <sup>®</sup> DE <sup>®</sup> レソヘンタミンP0付加物(n=7)		0.3					
	牛脂アルカノイルジエチレソトリアミン							
	アミノ化リグニン			0.2			0.3	0.1
	ステアリルイミダゾリン					0.2		
B 成分	ラウリルベタイン				0.1			0.1
	五倍子タンニン酸	0.2	0.2					
	ケブラチヨタンニン酸			0.2	0.2	0.2	0.3	0.1
	カテコール							
	レゾルシノール					0.2		
	ハイドロキノン			0.1				
	ピロガロール						0.1	
	没食子酸	0.1						
C,D 成分	没食子酸メチル		0.3					0.3
	リグニンスルホン酸カルシウム							
	グルコン酸ナトリウム							
	ポリエチレングリコール (MW=400)							
	グリセリン							
	ソルビトール							
	アスファルトの 針入度(1/10mm)	60-80		○		○		
		80-100	○		○		○	
		150-200			○			○
試験結果	圧裂強度(kgf/cm <sup>2</sup> )	4.3	4.0	4.2	4.1	3.8	4.3	4.1
	乳剤の貯蔵安定性	○ 2.0	○ 3.5	○ 1.5	○ 1.5	○ 2.7	○ 2.5	○ 1.8
	砕石への付着性	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
	骨材との混合性	○	○	◎	○	○	◎	◎
	セメントとの混合性	○ 1.4	○ 1.1	○ 0.9	○ 1.2	○ 1.2	○ 1.0	○ 1.0
	乳剤分解時間	○	○	○	○	○	○	○

表 6

添 加 剤 (重量部)		実 施 例						
		122	123	124	125	126	127	128
A-1 成分	牛脂ジブテントリアミン			0.5				
	牛脂トリブテントラミン				0.4			
	牛脂テトラブテントペンタミン							
	牛脂ペンタブテントヘキサミン							
	牛脂ジブテントリアミンE0付加物(n=15)					0.5		
	牛脂トリブテントラミンE0付加物(n=10)		0.4					0.3
	牛脂トリブテントラミンP0付加物(n=10)						0.5	
	牛脂テトラブテントペンタミンP0付加物(n=7)							
	牛脂アルカノイルジエントリアミン	0.3						
	アミノ化リグニン	0.3						
	ステアリルイミダゾリン							
B 成分	ラウリルベタイン							0.1
	五倍子タンニン酸						0.3	
	ケブラチョタンニン酸		0.2					0.3
	カテコール			0.1				
	レゾルシノール				0.1			
	ハイドロキノン					0.2		
	ピロガロール	0.2			0.3			
	没食子酸	0.1	0.2	0.2		0.1		
C,D 成分	没食子酸メチル							
	リグニンスルホン酸カルシウム		0.2					0.1
	グルコン酸ナトリウム			0.2				
	ポリエチレングリコール (MW=400)				0.1			0.1
	グリセリン					0.3		
試験結果	ソルビトール						0.3	
	アスファルトの 針入度(1/10mm)	60-80		○			○	
		80-100	○		○		○	
		150-200				○		○
試験結果	圧裂強度(kgf/cm <sup>2</sup> )	3.7	4.2	3.9	3.8	4.2	3.9	4.1
	乳剤の貯蔵安定性	○ 3.9	○ 1.5	○ 3.8	○ 1.9	○ 1.5	○ 2.4	○ 1.4
	砕石への付着性	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
	骨材との混合性	◎	○	○	◎	◎	◎	◎
	セメントとの混合性	○ 1.0	○ 0.2	○ 0.4	○ 0.9	○ 1.1	○ 1.2	○ 0.1
	乳剤分解時間	○	○	○	◎	◎	◎	◎

表 7

添 加 剤 (重量部)		実 施 例					
		129	130	131	132	133	134
A-1 成分	牛脂シブ°ロビ°レントリアミン					0.2	0.2
	牛脂トリブ°ロビ°レントラミン		0.3	0.2			
	牛脂テトラブ°ロビ°レンペンタミン						
	牛脂ヘンタブ°ロビ°レンヘキサミン						
	牛脂シブ°ロビ°レントリアミンE0付加物(n=15)						
	牛脂トリブ°ロビ°レントラミンE0付加物(n=10)	0.2			0.2	0.3	
	牛脂トリブ°ロビ°レントラミンP0付加物(n=10)						
	牛脂テトラブ°ロビ°レンペンタミンP0付加物(n=7)						
	牛脂アルカノイルジエレントリアミン				0.2		
	アミノ化リグニン	0.2		0.2			
	ステアリルイミダゾリン		0.2				
B 成分	ラウリルベタイン						
	五倍子タンニン酸			0.3			
	ケブラチヨタンニン酸	0.2	0.2		0.2	0.3	0.3
	カテコール						
	レゾルシノール						
	ハイドロキノン						
	ヒロガロール	0.1					
	没食子酸		0.1				
C,D 成分	没食子酸メチル						
	リグニンスルホン酸カルシウム		0.1	0.1		0.2	0.2
	グルコン酸ナトリウム	0.1			0.1		
	ポリエチレングリコール (MW=400)			0.2	0.1	0.1	0.2
	グリセリン	0.2					
	ソルビトール		0.2				
	アスファルトの 針入度(1/10mm)	60-80	○				
		80-100		○	○	○	○
		150-200			○		
試験結果	圧裂強度(kgf/cm <sup>2</sup> )	4.3	4.3	4.0	3.9	4.1	4.0
	乳剤の貯蔵安定性	○ 1.2	○ 2.0	○ 2.2	○ 2.5	○ 1.8	○ 1.7
	砕石への付着性	◎	◎	◎	◎	◎	◎
	骨材との混合性	◎	◎	◎	◎	◎	◎
	セメントとの混合性	○ 0.2	○ 0.2	○ 0.3	○ 0.2	○ 0.3	○ 0.2
	乳剤分解時間	◎	◎	◎	◎	◎	◎

表 8

添 加 剤 (重量部)		比 較 例						
		101	102	103	104	105	106	107
A-1 成分	牛脂シ <sup>7</sup> ° <sup>0</sup> ビ <sup>0</sup> レントリアミン	0.5						
	牛脂トリ <sup>7</sup> ° <sup>0</sup> ビ <sup>0</sup> レントラミン		0.5					
	牛脂テトラ <sup>7</sup> ° <sup>0</sup> ビ <sup>0</sup> レン <sup>0</sup> タミン			0.5				
	牛脂ヘンタ <sup>7</sup> ° <sup>0</sup> ビ <sup>0</sup> レン <sup>0</sup> タミン				0.5			
	牛脂シ <sup>7</sup> ° <sup>0</sup> ビ <sup>0</sup> レントリアミンE0付加物(n=15)					0.6		
	牛脂トリ <sup>7</sup> ° <sup>0</sup> ビ <sup>0</sup> レントラミンE0付加物(n=10)						0.6	
	牛脂トリ <sup>7</sup> ° <sup>0</sup> ビ <sup>0</sup> レントラミンP0付加物(n=10)							0.6
	牛脂テトラ <sup>7</sup> ° <sup>0</sup> ビ <sup>0</sup> レン <sup>0</sup> タミンP0付加物(n=7)							
	牛脂アルカノイルジ <sup>0</sup> エチレントリアミン							
	アミノ化リグニン							
	ステアリルイミダゾリン							
	ラウリルベタイン							
B 成分	五倍子タンニン酸							
	ケブラチョタンニン酸							
	カテコール							
	レゾルシノール							
	ハイドロキノン							
	ピロガロール							
	没食子酸							
	没食子酸メチル							
C,D 成分	リグニンスルホン酸カルシウム			0.2				
	グルコン酸ナトリウム						0.1	
	ポリエチレングリコール (MW=400)					0.1		
	グリセリン							
	ソルビトール						0.1	
アスファルトの 針入度(1/10mm)		60-80	○		○			○
		80-100		○		○		
		150-200			○		○	
試験結果	圧裂強度(kgf/cm <sup>2</sup> )	1.8	1.7	1.8	1.6	1.9	1.7	1.9
	乳剤の貯蔵安定性	○ 2.6	○ 3.4	○ 4.7	× 6.5	× 5.2	○ 4.0	× 5.4
	碎石への付着性	△	△	△	×	×	×	×
	骨材との混合性	△	△	△	△	△	△	△
	セメントとの混合性	× 8.5	× 8.7	× 3.9	× 9.1	× 6.5	× 4.7	× 5.8
	乳剤分解時間	△	△	△	△	△	△	△

表 9

添 加 剤 (重量部)		比 較 例						
		108	109	110	111	112	113	114
A-1 成分	牛脂シブア <sup>®</sup> D <sup>®</sup> レントリアミン							
	牛脂トリア <sup>®</sup> D <sup>®</sup> レンテラミン							
	牛脂テトラ <sup>®</sup> D <sup>®</sup> レンペンタミン							
	牛脂ペンタ <sup>®</sup> D <sup>®</sup> レンヘキサミン							
	牛脂シブア <sup>®</sup> D <sup>®</sup> レントリアミンE0付加物 (n=15)							
	牛脂トリア <sup>®</sup> D <sup>®</sup> レンテラミンE0付加物 (n=10)						0.2	
	牛脂トリア <sup>®</sup> D <sup>®</sup> レンテラミンP0付加物 (n=10)							0.3
	牛脂テトラ <sup>®</sup> D <sup>®</sup> レンペンタミンP0付加物 (n=7)	0.6						
	牛脂アルカノイルジ <sup>®</sup> イレントリアミン		0.5					
	アミノ化リグニン			1.0				
	ステアリルイミダゾリン				0.8			0.2
B 成分	ラウリルベタイン					0.7	0.2	
	五倍子タンニン酸							
	ケブラチヨタンニン酸							
	カテコール							
	レゾルシノール							
	ハイドロキノン							
	ピロガロール							
	没食子酸							
C,D 成分	没食子酸メチル							
	リグニンスルホン酸カルシウム						0.2	
	グルコン酸ナトリウム							
	ポリエチレングリコール (MW=400)							
	グリセリン	0.3						0.2
アスファルトの 針入度 (1/10mm)	ソルビトール							
	60-80				○			○
	80-100	○	○			○		
試験結果	150-200			○			○	
	圧裂強度 (kgf/cm <sup>2</sup> )	1.8	1.7	1.7	1.9	1.7	1.6	1.8
	乳剤の貯蔵安定性	×	×	○	○	○	○	○
		5.3	6.3	4.0	4.2	3.7	3.0	3.1
	碎石への付着性	×	△	△	×	×	×	×
	骨材との混合性	△	△	△	△	×	△	△
試験結果	セメントとの混合性	×	×	×	×	×	×	×
		4.6	4.3	4.5	8.1	8.2	3.6	5.0
	乳剤分解時間	△	△	△	△	×	×	△

表 10

添 加 剤 (重量部)		比 較 例					
		115	116	117	118	119	120
A-1 成分	牛脂シブ°Dヒ°レントリアミン						
	牛脂トリブ°Dヒ°レントラミン						
	牛脂テトラブ°Dヒ°レンペンタミン		0.6				
	牛脂ペンタブ°Dヒ°レンヘキサミン						
	牛脂シブ°Dヒ°レントリアミンE0付加物(n=15)			0.5			
	牛脂トリブ°Dヒ°レントラミンE0付加物(n=10)	0.3			0.6		
	牛脂トリブ°Dヒ°レントラミンP0付加物(n=10)						
	牛脂テトラブ°Dヒ°レンペンタミンP0付加物(n=7)					0.5	
	牛脂アルカノイルジエチレントリアミン						0.2
	アミノ化リグニン	0.2					0.2
	ステアリルイミダゾリン						
	ラウリルベタイン						
B 成分	五倍子タンニン酸						
	ケブラチヨタンニン酸						
	カテコール						
	レゾルシノール						
	ハイドロキノン						
	ピロガロール						
	没食子酸						
	没食子酸メチル						
C,D 成分	リグニンスルホン酸カルシウム	0.1					
	グルコン酸ナトリウム						
	ポリエチレングリコール (MW=400)	0.1					
	グリセリン						
	ソルビトール						
アスファルトの 針入度(1/10mm)		60-80		○			
		80-100	○		○		○
		150-200		○		○	
試験結果	圧裂強度(kgf/cm <sup>2</sup> )	1.7	1.8	1.7	1.8	1.7	1.9
	乳剤の貯蔵安定性	○ 2.9	○ 4.4	× 5.4	○ 4.8	× 5.7	○ 4.6
	砕石への付着性	×	△	×	×	×	△
	骨材との混合性	△	△	△	△	△	△
	セメントとの混合性	×	×	×	×	×	×
		3.7	7.9	7.0	4.1	4.3	3.9
	乳剤分解時間	△	△	△	△	△	△

表 11

添加剤（重量部）		比較例								
		121	122	123	124	125	126	127		
界面活性剤	牛脂 $\gamma$ -DL-レシパミン	0.5								
	牛脂 $\gamma$ -DL-レシパミンE0付加物(n=3)		0.5							
	牛脂モノアミン*			0.5						
	牛脂モノアミンP0付加物(n=7)**				0.5					
	ステアリルトリメチルアンモニウムクロライド*					0.6				
	ネオリオキシエチレンノニルフェニールエーテル(n=85)						1.0			
	ドデシルベンゼン硫酸ナトリウム							0.6		
オレイン酸ソーダ										
B成分	五倍子タンニン酸		0.3							
	ケブラチヨタンニン酸						0.5			
	カテキオール									
	レゾルシノール									
	ハイドロキノン									
	ピロガロール			0.3						
	没食子酸									
没食子酸メチル										
C,D成分	リグニンスルホン酸カルシウム					0.2				
	グルコン酸ナトリウム									
	ポリエチレングリコール（MW=400）							0.1		
	グリセリン									
	ソルビトール									
アスファルトの 針入度(1/10mm)		60-80	○			○			○	
		80-100		○				○		
		150-200				○			○	
試験結果	圧裂強度(kgf/cm <sup>2</sup> )	1.8	2.8	2.9	1.7	2.0	1.5	1.8		
	乳剤の貯蔵安定性	○ 4.5	○ 3.5	× 5.4	× 6.5	× 6.4	○ 3.8	○ 4.5		
	碎石への付着性	×	○	○	△	×	△	×		
	骨材との混合性	×	△	△	×	×	◎	×		
	セメントとの混合性	×	○	×	○	○	○	×		
		9.3	1.4	2.8	1.6	0.3	0.1	3.7		
乳剤分解時間		×	×	×	×	△	△	×		

注) \* : モノ (牛脂アルキル) アミンを指す (下表中も同様)。

※※：モノ（牛脂アルキル）アミンのプロピレンオキシド付加物を指す（下表中も同様）。

表 1 2

添 加 剤 (重量部)		比較例			実施例			
		128	129	130	135	136	137	138
界面 活性 剤	牛脂7° $\alpha$ -レシチアミン		0.3	0.2				
	牛脂7° $\alpha$ -レシチアミンE0付加物(n=3)				0.2			
	牛脂モノアミン		0.3					0.2
	牛脂モノアミンP0付加物(n=7)				0.4			
	ステアリルトリメチルアンモニウムクロライド					0.4	0.3	
	6° $\alpha$ -リキシルセソニルフェニルエーテル(n=85)			1.0				0.5
	ドデシルベンゼン硫酸ナトリウム					0.2		0.2
	オレイン酸ソーダ	0.6					0.5	
B 成分	五倍子タンニン酸			0.2				
	ケブラチョタンニン酸				0.3		0.3	0.2
	カテコール			0.2				
	レゾルシノール							
	ハイドロキノン							
	ピロガロール							0.2
	没食子酸					0.3		
	没食子酸メチル						0.1	
C,D 成分	リグニンスルホン酸カルシウム				0.1			0.1
	グルコン酸ナトリウム					0.1		
	ポリエチレングリコール (MW=400)	0.3			0.1		0.2	0.1
	グリセリン							
	ソルビトール					0.2		0.1
アスファルトの 針入度(1/10mm)		60-80			○		○	
		80-100	○		○			○
		150-200		○		○		
試験結果	圧裂強度(kgf/cm <sup>2</sup> )	1.7	1.7	2.2	3.0	2.8	3.0	2.7
	乳剤の貯蔵安定性	×	○	○	○	○	○	○
		5.5	3.6	3.2	3.4	4.3	3.2	2.2
	碎石への付着性	×	×	△	○	○	○	○
	骨材との混合性	×	×	○	△	△	△	○
	セメントとの混合性	×	×	×	○	○	○	○
		9.5	8.6	3.2	1.6	1.8	1.8	1.5
乳剤分解時間		×	×	△	△	△	△	△

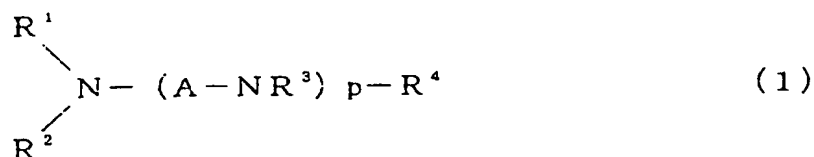


表 3 ～ 1 2 に示すように、本発明の実施例は、比較例に比べ、評価された種々の性能が優れている。

本発明は、このように説明されたが、同様のことが、多くの方法においては変えられ得ることは明白であろう。そのような変化は、発明の意図及び範囲から離れるものであるとは看做されない。そして、当業者にとっては明白なそのような修飾は、全て、以下のクレームの範囲に含まれると思われる。

## 請求の範囲

1. (B) ポリフェノール性化合物と、(C) アニオン性高分子分散剤、ヒドロキシカルボン酸及びヒドロキシカルボン酸の水溶性塩、及び、(D) 糖類、糖アルコール類及び多価アルコール類からなる群から選ばれた少なくとも一種からなるアスファルト乳剤用添加剤組成物。
2. 更に(A) 乳化剤を含有する、請求項1記載のアスファルト乳剤用添加剤組成物。
3. (B) 成分が、タンニン酸、タンニン化合物、カテコール、レゾルシノール、ハイドロキノン、ピロガロール、没食子酸及び没食子酸誘導体からなる群から選ばれた少なくとも一種である、請求項1記載のアスファルト乳剤用添加剤組成物。
4. (C) 成分が、リグニンスルホン酸、リグニンスルホン酸の水溶性塩、及びグルコン酸ナトリウムからなる群から選ばれた少なくとも一種である、請求項1記載のアスファルト乳剤用添加剤組成物。
5. (D) 成分が、ソルビトール、平均分子量が 200～5000のポリエチレングリコール及びグリセリンからなる群から選ばれた少なくとも一種である、請求項1記載のアスファルト乳剤用添加剤組成物。
6. (A) 成分が、下記式(1) で表された脂肪族アミン、アミノ化リグニン、炭素数7以上の炭化水素基を有するイミダゾリン、炭素数7以上の炭化水素基を有するベタイン及び炭素数7以上の炭化水素基を有するアミドベタインからなる群から選ばれた少なくとも一種である、請求項2記載のアスファルト乳剤用添加剤組成物：



式中、 $\text{R}^1$ は、炭素数8～22の、炭化水素基又はアシル基であり、 $\text{R}^2$ は、炭素数8～22の炭化水素基、水素原子又は式： $(\text{AO})_m - \text{H}$  [式中、 $\text{AO}$ は、炭素数2又は3のオキシアルキレン基を、 $m$ は、1～30の数を示す。] で示される基であり、 $\text{R}^3$ は、水素原子又は式： $(\text{AO})_m - \text{H}$  [式中、 $\text{AO}$ 及び $m$ は、前記定義の通りである。] で示される基であり、 $\text{R}^4$ は、水素原子又は式： $(\text{AO})_m - \text{H}$  [式中、 $\text{AO}$ 及び $m$ は、前記定義の通りである。] で示される基であり、 $\text{A}$ は、エチレン基又はプロピレン基であり、且つ、 $p$ は、2～5の整数である。

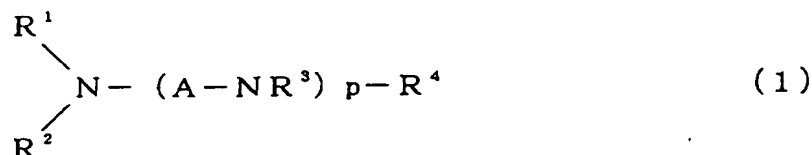
7. アスファルト、水、(A) 乳化剤、及び請求項1記載のアスファルト乳剤用添加剤組成物からなるアスファルト乳剤。

8. (B) 成分が、タンニン酸、タンニン化合物、カテコール、レゾルシノール、ハイドロキノン、ピロガロール、没食子酸及び没食子酸誘導体からなる群から選ばれた少なくとも一種である、請求項7記載のアスファルト乳剤。

9. (C) 成分が、リグニンスルホン酸、リグニンスルホン酸の水溶性塩、及びグルコン酸ナトリウムからなる群から選ばれた少なくとも一種である、請求項7記載のアスファルト乳剤。

10. (D) 成分が、ソルビトール、平均分子量が200～5000のポリエチレングリコール及びグリセリンからなる群から選ばれた少なくとも一種である、請求項7記載のアスファルト乳剤。

11. (A) 成分が、下記式(1) で表された脂肪族アミン、アミノ化リグニン、炭素数7以上の炭化水素基を有するイミダゾリン、炭素数7以上の炭化水素基を有するベタイン及び炭素数7以上の炭化水素基を有するアミドベタインからなる群から選ばれた少なくとも一種である、請求項7記載のアスファルト乳剤：



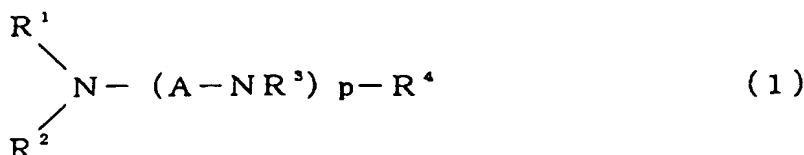
式中、 $R^1$ は、炭素数8～22の、炭化水素基又はアシル基であり、 $R^2$ は、炭素数8～22の炭化水素基、水素原子又は式： $(AO)_m - H$  [式中、 $AO$ は、炭素数2又は3のオキシアルキレン基を、 $m$ は、1～30の数を示す。] で示される基であり、 $R^3$ は、水素原子又は式： $(AO)_m - H$  [式中、 $AO$ 及び $m$ は、前記定義の通りである。] で示される基であり、 $R^4$ は、水素原子又は式： $(AO)_m - H$  [式中、 $AO$ 及び $m$ は、前記定義の通りである。] で示される基であり、 $A$ は、エチレン基又はプロピレン基であり、且つ、 $p$ は、2～5の整数である。

12. アスファルトと水との合計100重量部に対し、アスファルトを35～90重量部、水を65～10重量部、(B)成分を0.01～10重量部、及び、(C)成分及び(D)成分からなる群から選ばれた少なくとも一種を0.01～10重量部含有する、請求項7記載のアスファルト乳剤。

13. アスファルトと水との合計100重量部に対し、アスファルトを35～90重量部、水を65～10重量部、(A)成分を0.01～10重量部、(B)成分を0.01～10重量部、及び、(C)成分及び(D)成分からなる群から選ばれた少なくとも一種を0.01～10重量部含有する、請求項7記載のアスファルト乳剤。

14. 骨材と、請求項7記載のアスファルト乳剤からなる舗装用組成物。

15. (A-1) 下記式(1)で表された脂肪族アミン、アミノ化リグニン、炭素数7以上の炭化水素基を有するイミダゾリン、炭素数7以上の炭化水素基を有するベタイン及び炭素数7以上の炭化水素基を有するアミドベタインからなる群から選ばれた少なくとも一種と、(B)ポリフェノール性化合物からなるアスファルト乳剤用組成物：



式中、 $\text{R}^1$ は、炭素数8～22の、炭化水素基又はアシル基であり、 $\text{R}^2$ は、炭素数8～22の炭化水素基、水素原子又は式： $(\text{AO})_m - \text{H}$  [式中、 $\text{AO}$ は、炭素数2又は3のオキシアルキレン基を、 $m$ は、1～30の数を示す。] で示される基であり、 $\text{R}^3$ は、水素原子又は式： $(\text{AO})_m - \text{H}$  [式中、 $\text{AO}$ 及び $m$ は、前記定義の通りである。] で示される基であり、 $\text{R}^4$ は、水素原子又は式： $(\text{AO})_m - \text{H}$  [式中、 $\text{AO}$ 及び $m$ は、前記定義の通りである。] で示される基であり、 $\text{A}$ は、エチレン基又はプロピレン基であり、且つ、 $p$ は、2～5の整数である。

16. 更に、(C) アニオン性高分子分散剤、ヒドロキシカルボン酸及びヒドロキシカルボン酸の水溶性塩からなる群から選ばれた少なくとも一種、及び／又は(D) 糖類、糖アルコール類及び多価アルコール類からなる群から選ばれた少なくとも一種とを含有する、請求項15記載のアスファルト乳剤用組成物。

17. (B) 成分が、タンニン酸、タンニン化合物、カテコール、レゾルシノール、ハイドロキノン、ピロガロール、没食子酸及び没食子酸誘導体からなる群から選ばれた少なくとも一種である、請求項15記載のアスファルト乳剤用組成物。

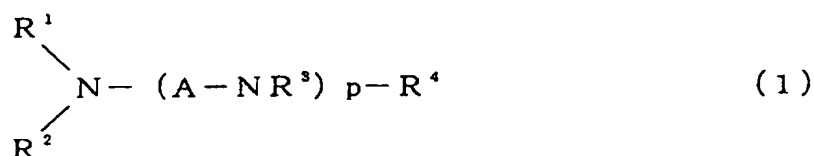
18. (C) 成分が、リグニンスルホン酸、リグニンスルホン酸の水溶性塩、及びグルコン酸ナトリウムからなる群から選ばれた少なくとも一種である、請求項16記載のアスファルト乳剤用組成物。

19. (D) 成分が、ソルビトール、平均分子量が200～5000のポリエチレングリコール及びグリセリンからなる群から選ばれた少なくとも一種である、請求項16記載のアスファルト乳剤用組成物。

20. アスファルト、水、及び請求項15記載のアスファルト乳剤用組成物からなるアスファルト乳剤。

21. アスファルトと水との合計 100重量部に対し、アスファルトを40～80重量部、水を60～20重量部、(A) 成分を0.01～10重量部、及び(B) 成分を0.01～5重量部含有する、請求項20記載のアスファルト乳剤。
22. 更に、アスファルトと水との合計 100重量部に対し、0.01～10重量部の(C) アニオン性高分子分散剤、ヒドロキシカルボン酸及びヒドロキシカルボン酸の水溶性塩からなる群から選ばれた少なくとも一種と、0.01～10重量部の(D) 糖類、糖アルコール類及び多価アルコール類からなる群から選ばれた少なくとも一種とを含有する、請求項21記載のアスファルト乳剤。
23. 骨材と、請求項20記載のアスファルト乳剤からなり、骨材とアスファルト乳剤との合計 100重量部に対し、骨材の量は75～95重量部であり、アスファルト乳剤の量は25～5重量部である舗装用組成物。
24. アスファルト乳剤の調製という、請求項1又は2に記載のアスファルト乳剤用添加剤組成物の用途。
25. アスファルト乳剤の調製という、請求項15に記載のアスファルト乳剤用組成物の用途。
26. 水、(A) 乳化剤、(B) ポリフェノール性化合物、及び、(C) アニオン性高分子分散剤、ヒドロキシカルボン酸及びヒドロキシカルボン酸の水溶性塩からなる群から選ばれた少なくとも一種、及び／又は、(D) 糖類、糖アルコール類及び多価アルコール類からなる群から選ばれた少なくとも一種からなる乳化用組成物。
27. (C) 成分及び(D) 成分を含有する、請求項26記載の乳化用組成物。
28. 更に一塩基酸を含有する、請求項26記載の乳化用組成物。
29. 更に一塩基酸を含有する、請求項27記載の乳化用組成物。
30. 水、(A-1) 下記式(1) で表された脂肪族アミン、アミノ化リグニン、炭素数7以上の炭化水素基を有するイミダゾリン、炭素数7以上の炭化水素基を有

するベタイン及び炭素数7以上の炭化水素基を有するアミドベタインからなる群から選ばれた少なくとも一種、及び(B) ポリフェノール性化合物からなる乳化用組成物：



式中、 $R^1$ は、炭素数8～22の、炭化水素基又はアシル基であり、 $R^2$ は、炭素数8～22の炭化水素基、水素原子又は式： $(AO)_m - H$  [式中、 $AO$ は、炭素数2又は3のオキシアルキレン基を、 $m$ は、1～30の数を示す。] で示される基であり、 $R^3$ は、水素原子又は式： $(AO)_m - H$  [式中、 $AO$ 及び $m$ は、前記定義の通りである。] で示される基であり、 $R^4$ は、水素原子又は式： $(AO)_m - H$  [式中、 $AO$ 及び $m$ は、前記定義の通りである。] で示される基であり、 $A$ は、エチレン基又はプロピレン基であり、且つ、 $p$ は、2～5の整数である。

31. 更に、(C) アニオン性高分子分散剤、ヒドロキシカルボン酸及びヒドロキシカルボン酸の水溶性塩からなる群から選ばれた少なくとも一種と、(D) 糖類、糖アルコール類及び多価アルコール類からなる群から選ばれた少なくとも一種とを含有する、請求項30記載の乳化用組成物。

32. 更に一塩基酸を含有する、請求項30記載の乳化用組成物。

33. 更に一塩基酸を含有する、請求項31記載の乳化用組成物。

34. 更に水溶性無機塩を含有する、請求項30記載の乳化用組成物。

35. (B) 成分の水溶液に、(A) 成分と(D) 成分との混合物を添加し、水溶液を調製する工程1、及び、得られた水溶液に、(C) 成分の水溶液を添加する工程2からなる、請求項27記載の乳化用組成物の調製方法。

36. (B) 成分の水溶液に、一塩基酸を添加し、酸性水溶液を調製する工程1、その酸性水溶液に、(A) 成分と(D) 成分との混合物を添加し、水溶液を調製する

工程 2、及び、得られた水溶液に、(C) 成分の水溶液を添加する工程 3 からなる、請求項 2 9 記載の乳化組成物の調製方法。

3 7. (B) 成分の水溶液に、(A-1) 成分と (D) 成分との混合物を添加し、水溶液を調製する工程 1、及び、得られた水溶液に、(C) 成分の水溶液を添加する工程 2 からなる、請求項 3 1 記載の乳化用組成物の調製方法。

3 8. (B) 成分の水溶液に、一塩基酸を添加し、酸性水溶液を調製する工程 1、その酸性水溶液に、(A-1) 成分と (D) 成分との混合物を添加し、水溶液を調製する工程 2、及び、得られた水溶液に、(C) 成分の水溶液を添加する工程 3 からなる、請求項 3 3 記載の乳化用組成物の調製方法。

3 9. 請求項 2 6 又は 3 0 記載の乳化用組成物に、熔融アスファルトを加え、混合物を調製し、次いで、その混合物を乳化することからなる、アスファルトを水に乳化させる方法。

4 0. アスファルトの乳化のためという、請求項 2 6 又は 3 0 に記載の乳化用組成物の用途。



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP96/03256

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl<sup>6</sup> C08L95/00, C08K5/13, C08K5/09, C08K5/053 // (C08L95/00, C08L97:00)

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl<sup>6</sup> C08L95/00, C08L97/00, C08K5/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 6-41440, A (Shell International Research Maatschappij N.V.), February 15, 1994 (15. 02. 94), Claim & US, 5212220, A	1 - 40

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

January 27, 1997 (27. 01. 97)

Date of mailing of the international search report

February 4, 1997 (04. 02. 97)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Facsimile No.

Authorized officer

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int. Cl. <sup>8</sup> C08L95/00, C08K5/13, C08K5/09, C08K5/053 // (C08L95/00, C08L97:00)		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int. Cl. <sup>8</sup> C08L95/00, C08L97/00, C08K5/00		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P, 6-41440, A (シエル・インターナショナル・リサーチ・マートスハツ ペイ・ベー・ヴェー), 15. 2月. 1994 (15. 02. 94), 特許請求の範 囲&US, 5212220, A	1-40
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願 の日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 27. 01. 97	国際調査報告の発送日 04.02.97	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 鐘尾 みや子 印	4 J 9362
電話番号 03-3581-1101 内線 3459		